



Institut für Schicht- und Ionentechnik

***Herstellung, Charakterisierung und Optimierung
von Hoch- T_c -Stufenkontakten:
Entwicklung waferskalierter aktiver
supraleitender Bauelemente und
hochfrequenztauglicher Josephson-Kontakte***

Mathias Vaupel

***Herstellung, Charakterisierung und Optimierung
von Hoch- T_c -Stufenkontakten:
Entwicklung waferskalierter aktiver
supraleitender Bauelemente und
hochfrequenztauglicher Josephson-Kontakte***

Mathias Vaupel

Berichte des Forschungszentrums Jülich ; 3636
ISSN 0944-2952
Institut für Schicht- und Ionentechnik Jül-3636
D 38 (Diss. Universität Köln)

Zu beziehen durch: Forschungszentrum Jülich GmbH · Zentralbibliothek
D-52425 Jülich · Bundesrepublik Deutschland
☎ 02461/61-6102 · Telefax: 02461/61-6103 · e-mail: zb-publikation@fz-juelich.de

Abstract

Preparation, characterisation and optimisation of high- T_c step-edge junctions:

Development of wafer scaled active superconducting devices and Josephson junctions suitable for high frequency applications

A technology for the fabrication of high-temperature step-edge junctions on large area (2") suitable for high-frequency application has been developed. For that, epitaxial growth of $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$ (YBCO) on steps in different materials (LaAlO_3 , sapphire and CeO_2) was investigated and corresponding junctions were examined electrically and tested in magnetometers and planar gradiometers.

YBCO films deposited on steps in LaAlO_3 by sputtering and pulsed laser deposition (PLD) were investigated by transmission electron microscopy (TEM). The more complex morphology of sputtered films indicated by secondary phases and small segments of a- and c-axis oriented YBCO was explained by the continuous film nucleation in contrast to the pulsed film nucleation of laser ablated films. Furthermore the growth on steps in sapphire and CeO_2 was studied by TEM and described by two models for epitaxial growth on steps. Only for steps in a CeO_2 buffer layer with a step angle of about 60° a controlled formation of grain boundaries was observed. In this case the YBCO film grew c-axis oriented normal to the step surface.

Step-edge junctions on sapphire substrates prepared in such a way with a ratio of film thickness to step height of $3/2$ showed resistively shunted junction like behaviour. But small modulations of the $I_c(B)$ -curves indicated a inhomogeneous current distribution at the junction generated by imperfect film growth on the step. Nevertheless the behaviour of rf-SQUIDs on sapphire were comparable to the behaviour of SQUIDs on standard substrates (e.g. LaAlO_3).

Furthermore planar rf-SQUID gradiometers were fabricated in multilayer technology. For the first time the decrease of the inductance and the white noise by a superconducting cover strip of the slit could be demonstrated.

In conclusion, a picture of epitaxial YBCO-film growth on steps was developed in this work. Progress in the fabrication of step-edge junctions on sapphire substrates was made. Devices on 2"-substrates in single- and multilayer systems could be fabricated homogeneous and reproducible by high-pressure magnetron sputtering.

Inhaltsverzeichnis

1. EINLEITUNG..... 1

2. GRUNDLAGEN 5

2.1 SUPRALEITER IM MAGNETFELD..... 7

2.2 FLUX-FLOW-INSTABILITÄT 12

2.2.1 Theorie der Flux-Flow-Instabilität 12

2.3 JOSEPHSON- UND FLUX-FLOW-KONTAKTE..... 18

2.3.1 Josephson-Gleichungen..... 18

2.3.2 RCSJ-Modell 19

2.3.3 Josephson-Kontakt im Magnetfeld..... 21

2.3.4 HTSL-Kontakte 26

2.3.4.1 Korngrenzenkontakte 26

2.3.4.2 Kontaktausführungen 30

3. HERSTELLUNG..... 33

3.1 SCHICHTHERSTELLUNG..... 33

3.1.1 Prinzip der Hochdruckkathodenzerstäubung..... 34

3.1.2 Beschreibung der Anlage 36

3.1.3 Struktur und Eigenschaften der verwendeten Materialien 39

3.1.3.1 Substrate 39

3.1.3.2 $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ 42

3.1.4	Deposition	44
3.1.4.1	Deposition des $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$	44
3.1.4.2	Deposition der Pufferschichten	46
3.1.5	Kristallines Filmwachstum	46
3.1.5.1	Kristallwachstum	46
3.1.5.2	Epitaxie	48
3.1.5.3	Rißbildung	50
3.1.6	Charakterisierung der Filme	53
3.1.6.1	Charakterisierung der YBCO-Filme	53
3.1.6.2	Charakterisierung der Puffer- und Isolatorschichten	57
3.2	STRUKTURIERUNG	63
3.2.1	Stufenpräparation	63
3.2.2	Strukturierung des YBCO-Films	69
4	ERGEBNISSE	73
4.1	PRÄPARATIVE ERGEBNISSE	74
4.1.1	YBCO-Wachstum an Stufen: Vergleich unterschiedlicher Abscheideverfahren	75
4.1.2	Waferskalierung	79
4.1.3	Präparation von Stufenkontakten auf 2“-Saphir	82
4.1.3.1	Schichtwachstum an Stufen	83
4.1.3.2	Stufe im Saphir	88
4.1.3.3	Stufe im Puffer	89
4.1.3.4	YBCO-Wachstum auf CeO_2 -Stufen	95
4.1.4	Zusammenfassung	100

4.2	UNTERSUCHUNG DES ELEKTRISCHEN KONTAKTVERHALTENS	104
4.2.1	Kontakte auf der Basis von Flux-Flow-Instabilitäten	105
4.2.2	Korngrenzenkontakte	116
4.3	ANWENDUNG DER KONTAKTE IN RF-SQUIDS.....	122
4.3.1	Charakterisierung und Vergleich von rf-SQUIDs	127
5.	ZUSAMMENFASSUNG.....	137

1. Einleitung

Die Entdeckung der keramischen Supraleiter mit Sprungtemperaturen teilweise deutlich über der Siedetemperatur des Stickstoffes im Jahre 1986 führte zu einem enormen Aufschwung der Supraleiteraktivitäten, der sich auch auf die Entwicklung supraleitender Kryoelektronik auswirkte [Bed86, Wu87]. Sicherlich einer der wichtigsten Bausteine im Bereich der aktiven Bauelemente ist der sog. Josephson-Kontakt. Dieser besteht im klassischen Sinn aus zwei durch eine extrem dünne Isolationsschicht getrennte Supraleiter. Aufgrund der besonderen Tunneleigenschaften der supraleitenden Ladungsträger, der sog. Cooperpaare, sind derartige Kontakte in der Lage, magnetischen Fluß äußerst empfindlich auflösen. So können Magnetfeldsensoren mit Josephson-Kontakten Empfindlichkeiten bis zu ca. $1\text{fT}/\sqrt{\text{Hz}}$ besitzen. Die Verwendung solch sensitiver Sensoren bei Arbeitstemperaturen von 77,4K (Siedetemperatur von Stickstoff) statt 4,2K (Siedetemperatur von Helium) eröffnete eine Reihe neuartiger Einsatzgebiete.

Auf Grund der geänderten charakteristischen Parameter, u.a. der supraleitenden Kohärenzlänge ξ , der Anisotropie und insbesondere des komplexen oxydischen Schichtaufbaus, war es allerdings notwendig, neuartige Josephson-Kontakttypen für Hochtemperatursupraleiter (HTSL)-Anwendungen zu entwickeln. So entstanden in den letzten Jahren u.a. Josephson-Kontakte auf Einkristallen, an epitaxial orientierten Korngrenzen oder auch auf Stufen oder Rampen im Substrat. Bisher sind diese Kontakte auf speziellen Substraten der Größe $10\times 10\text{mm}^2$ hergestellt worden, die vor allem das epitaktische Wachstum der Filme gewährleisten sollten. Im Zuge des Einsatzes der Kontakte in einer Reihe von Anwendungen werden jedoch an die Substrate und deren Größe weitere Anforderungen gestellt. So ist es u.a. für digitale Anwendungen notwendig, eine große Anzahl von Kontakten beliebig auf einem Träger platzieren zu können, wobei die Kontakte eine große Homogenität aufweisen sollten. Ferner erfordern Anwendungen, z.B. im Bereich der zerstörungsfreien Werkstoffprüfung (NDE) oder biomagnetischen Untersuchungen, Bauelemente mit Abmessungen, die deutlich größer als die bisherige Standardgröße von $10\times 10\text{mm}^2$ dimensioniert sind. So sollte z.B. die Basislänge von Gradiometern nicht kleiner als die Entfernung des Gradiometers zum zu untersuchenden Objekt sein. Insgesamt ergibt sich daraus die Forderung nach der Entwicklung einer großflächigen Herstellung von Kontakten.

Des Weiteren spielen für eine Reihe von Anwendungen die Substrateigenschaften eine wichtige Rolle. So sollte für eine reproduzierbare Herstellung von Kontakten und Bauelementen das Substrat einem technisch definierten und reproduzierbaren Standard entsprechen. Im Falle von Anwendungen im Mikrowellenbereich, z.B. bei Mischern, Detektoren, Sendern und Empfängern, ist es oft unabdingbar, daß die Trägermaterialien geeignete hf-Eigenschaften besitzen. Ferner erfordert der Einsatz von Kontakten in supraleitenden/halbleitenden Hybridsystemen, ein Substratmaterial einzusetzen, das sich auch für das epitaktisches Wachstum von Halbleitermaterialien, wie Silizium, eignet.

Deshalb war Ziel der Arbeit, die Herstellungsmöglichkeit von Josephson- und Josephson-ähnlichen-Kontakten auf technischen, hf-tauglichen und großflächigen Substraten zu untersuchen. Dieses umfaßt im einzelnen:

1. Die Herstellung von Stufenkontakten auf technisch relevanten Trägern,
2. die Untersuchung des kristallinen Wachstums von YBCO-Filmen an unterschiedlichsten Stufen auf technischen Trägern,
3. die Entwicklung eines waferskalierten Herstellungsverfahrens für Stufenkontakte,
4. die grundlegende Charakterisierung des elektronischen und supraleitenden Verhaltens der resultierenden Kontakttypen und
5. der abschließenden Demonstration der Anwendbarkeit der entwickelten Technologie zur großflächigen Präparation von Josephson- und Josephson-ähnlichen Kontakten in aktiven Bauelementen.

Die Arbeit ist daher folgendermaßen aufgebaut.

Nach dem einleitenden 1. Kapitel befaßt sich das 2. Kapitel mit den für das Verständnis der Arbeit wichtigen theoretischen Grundlagen. Zuerst wird das Verhalten dünner YBCO-Schichten im Magnetfeld vorgestellt. Insbesondere wird dabei auf das Phänomen der Flux-Flow-Instabilität eingegangen. Anschließend werden die Grundlagen zu Josephson- und Flux-Flow-Kontakten sowie deren Ausführungen beschrieben.

Das 3. Kapitel behandelt die Herstellungsmethoden für Kontakte und Bauelemente. Zunächst wird das Depositionsverfahren für die großflächige, epitaktische Abscheidung von supraleitenden und isolierenden Filmen auf Saphir- und LaAlO_3 -Substraten erläutert. Daran schließt sich eine Ausführung über kristallines Wachstum an. Es werden die

Charakterisierungsmethoden und deren Ergebnisse für gesputterte YBCO-Schichten und Pufferschichten vorgestellt. Schließlich erfolgt ein Überblick über die eingesetzten Strukturierungstechnologien für die Herstellung von Stufen und strukturierten Bauelementen.

Das 4. Kapitel enthält die Präsentation und Interpretation der Ergebnisse dieser Arbeit. Dieses Kapitel ist in drei Teile gegliedert. Der erste Teil befaßt sich mit den strukturellen Untersuchungen des Schichtwachstums an Stufen auf großflächigen Substraten. Dazu werden zuerst Unterschiede im Wachstum von YBCO-Filmen an Stufen zwischen der in dieser Arbeit eingesetzten Kathodenzerstäubung und der Laserablation als Alternativverfahren aufgezeigt. Danach wird die Eignung von Substratmaterialien für die Waferskalierung und mögliche Pufferschichtsysteme für die Stufenpräparation untersucht. Weiterhin wird anhand von Wachstumsmodellen und TEM-Aufnahmen das Wachstum von YBCO auf Stufen insbesondere in Saphir und CeO_2 diskutiert. Der zweite Teil enthält die elektronischen Untersuchungen der unterschiedlichen Kontakttypen. Hierbei werden sowohl Korngrenzenkontakte als auch korngrenzenfreie Kontakte eingehend charakterisiert.. Im dritten Teil dieses Kapitels wird der Einsatz der entwickelten Kontakte in rf-SQUIDs in Form von großflächig präparierten Magnetometern und planaren Gradiometern demonstriert.

Im 5. Kapitel werden die wichtigsten Ergebnisse schließlich zusammengefaßt.

2. Grundlagen

Das Phänomen Supraleitung beschreibt einen Ordnungsvorgang der Leitungselektronen, der bei tiefen Temperaturen stattfindet. Dabei zeichnet sich der supraleitende Zustand durch die Kondensation der Quasiteilchen zu Paaren, den sog. Cooperpaaren, unterhalb der Sprungtemperatur T_c aus. Da die Cooperpaare einen Gesamtspin $s = 0$ besitzen und somit Bosonen sind, befinden sich die gesamten supraleitenden Ladungsträger in einem einzigen makroskopischen Quantenzustand, der durch eine Vielteilchenwellenfunktion

$$\psi(\underline{r}, t) = |\psi(\underline{r}, t)| e^{i\theta(\underline{r}, t)}, \quad (2.1)$$

beschrieben werden kann. Dabei ist $n_s = |\psi(\underline{r}, t)|^2$ die Dichte der Cooperpaare und θ die Phase der Cooperpaarwellenfunktion. Energetisch sind die supraleitenden Cooperpaare in diesem Zustand durch die Energielücke ΔE vom Leitungsband der normalleitenden Elektronen getrennt. Der supraleitende Zustand besitzt deshalb aufgrund des einheitlichen Quantenzustandes der Cooperpaare und der Energielücke ΔE folgende charakteristische Eigenschaften: Zum einen kann ein dc-Strom dissipationsfrei ($\rho = 0$) fließen, d.h. ein Supraleiter besitzt keinen meßbaren Widerstand für Gleichstrom, solange eine kritische Stromdichte nicht überschritten wird. Weiterhin ist ein Supraleiter ein perfekter Diamagnet ($\chi = -1$), d.h. ein Magnetfeld wird aus seinem Inneren bis auf eine dünne Oberflächenschicht verdrängt. Hierfür sind Abschirmströme in der Oberfläche des Supraleiters verantwortlich, die das Magnetfeld kompensieren. Dieser Effekt wurde 1933 von Meissner und Ochsenfeld [Mei33] experimentell gefunden und nach ihnen benannt (Meissner-Ochsenfeld-Effekt). Die starre Phasenkorrelation der Cooperpaare schließlich manifestiert sich in der Quantisierung des magnetischen Flusses und den sog. Josephson-Effekten.

Im folgenden Kapitel sollen die Auswirkungen der oben aufgeführten Effekte auf die in dieser Arbeit besprochenen Experimente beschrieben werden. Dazu wird das Verhalten von Supraleitern, insbesondere von Supraleitern 2. Art, im Magnetfeld beschrieben. Auf das interessante Phänomen der Flux-Flow-Instabilitäten wird besonders eingegangen. Danach werden die physikalischen Grundlagen und die praktische Umsetzung von Josephson- und Flux-Flow-Kontakten skizziert.

2.1 Supraleiter im Magnetfeld

In diesem Absatz soll ein kurzer Überblick über das Verhalten von Supraleitern im Magnetfeld gegeben werden. Eine weitergehende Einführung zu diesem Thema findet man z.B. in Ref. [Buc90, Tin75].

Das Verhalten eines Supraleiters im Magnetfeld B wird durch die Situation an der Phasengrenze supraleitend/normalleitend geprägt. An dem Übergang kann sich die Cooperpaardichte aufgrund der endlichen Ausdehnung der Cooperpaare nicht abrupt auf Null ändern, sondern nimmt über eine charakteristische Länge ξ , der sog. Kohärenzlänge, ab. Da es an solchen Grenzflächen keine unendlichen Abschirmströme geben kann, dringt das Magnetfeld auf einer Länge λ_L , der sog. London-Eindringtiefe, in den Supraleiter ein. Die Größe der Grenzflächenenergie γ wird nun durch das Verhältnis der beiden Größen, dem Ginzburg-Landau-Parameter

$$\kappa = \frac{\lambda_L}{\xi} \quad (2.2)$$

bestimmt. Für $\kappa < 1/\sqrt{2}$ ist die Grenzflächenenergie positiv, dann liegt ein Typ-I Supraleiter vor. Für $\kappa > 1/\sqrt{2}$, d.h. für eine negative Grenzflächenenergie, handelt es sich um einen Typ-II Supraleiter.

Supraleiter 2. Art, zu denen auch die keramischen Hochtemperatursupraleiter gehören, unterscheiden sich von den Supraleitern 1. Art u.a. durch die Existenz mehrerer Phasen im B - T -Diagramm (Abb. 2.1). Bis zum unteren kritischen Feld B_{c1} ist die Grenzflächenenergie positiv, d.h. es dringt kein magnetischer Fluß in den Supraleiter ein. Wie beim Typ-I Supraleiter liegt der sog. Meissner-Ochsenfeld-Effekt vor. Für magnetische Induktionen $B \geq B_{c1}$ ist jedoch $\gamma < 0$, d.h. magnetischer Fluß dringt in die Probe ein. Aufgrund der Flußquantisierung und $\gamma < 0$ wird die Normalleiter-Supraleiter-Grenzfläche maximiert, der magnetische Fluß dringt in Form der kleinstmöglichen Einheiten, den sog. Flußschläuchen (Abrikosov-Vortices) mit einem Flußquant

$$\Phi_0 = \frac{h}{2e} = 2 \cdot 10^{-15} \text{ Wb}, \quad (2.3)$$

in die Probe ein. Diese Phase wird als gemischter Zustand oder Shubnikov-Phase bezeichnet. Bei Erreichen des sog. oberen kritischen Feldes B_{c2} ist nun die durch die Cooperpaarkondensation

gewonnene Energie der Feldverdrängungsenergie gleich, der Supraleiter geht in den normalleitenden Zustand über.

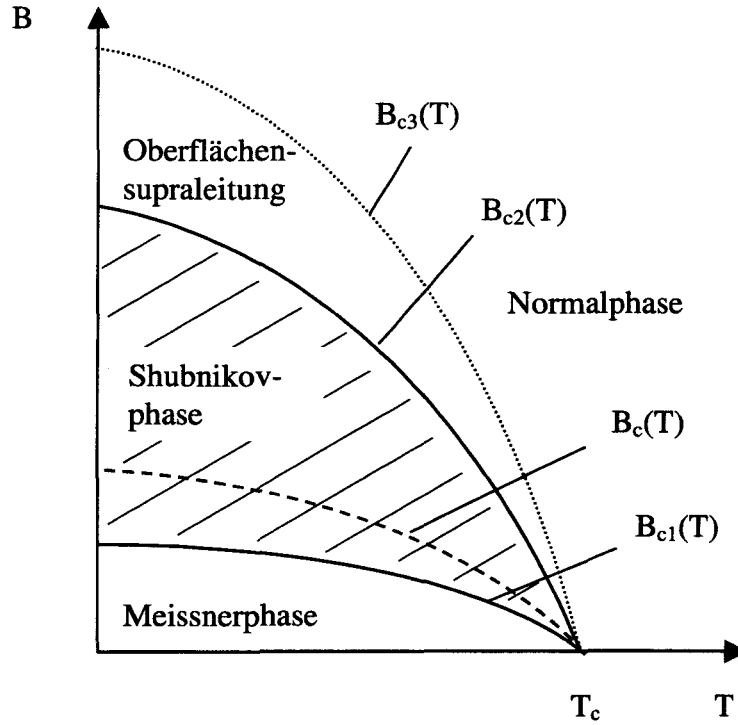


Abb. 2.1: Phasendiagramm des Supraleiters 2. Art

Mit Hilfe des thermodynamischen kritischen Feldes B_c und des Ginzburg-Landau-Parameters läßt sich das Verhältnis der kritischen Magnetfelder B_{c1} und B_{c2} definieren:

$$B_c = \frac{\Phi_0}{\sqrt{8\pi}\xi(T)\lambda_L}, \quad (2.4)$$

$$B_{c1} = \frac{1}{2\kappa} (\ln \kappa + 0.08) B_c, \quad (2.5)$$

$$B_{c2} = \sqrt{2\kappa} B_c. \quad (2.6)$$

Die Existenz eines dritten kritischen Feldes B_{c3} beruht nun darauf, daß sich an der Grenzfläche zwischen Supraleiter und Isolator parallel zum Feld eine supraleitende Schicht mit der Dicke $\xi(T)$ auch bei Feldern oberhalb von B_{c2} ausbilden kann. Nach Saint-James und de Gennes [Sai63] gilt für dieses kritische Feld z.B. im Falle eines unendlich ausgedehnten Supraleiters:

$$B_{c3} = 1.695 B_{c2}. \quad (2.7)$$

In Tab. 2.1 sind einige Parameter typischer Supraleiter wiedergegeben.

Material	T_c [K]	λ [nm]	ξ [nm]	κ	B_c [T]	B_{c1} [mT]	B_{c2} [T]
Pb (Typ I)	7,1	40	90	0,44	0,08	-	-
Nb	9,2	60	40	1,5	0,12	20	0,26
YBCO	92-95						
(llc)		26	3,4	7,6	1,4	1-10 @77K	65
(\perp c)		125	0,7	37	1,4	100 @77K	300

Tab. 2.1: Charakteristische Eigenschaften einiger typischer Supraleiter bei $T = 0K$ [Rob64, Ber92, Bat, Wor87]

Da B_{c1} für HTS-Materialien sehr klein ist, ist für einen Großteil der Messungen nur der gemischte Zustand $B_{c1} \leq B \leq B_{c2}$ relevant. In dieser Shubnikov-Phase bildet sich aufgrund der abstoßenden Wechselwirkung der Vortices untereinander (Vortex-Vortex-Wechselwirkung) in isotropen Supraleitern ein regelmäßiges hexagonales Gitter mit einer feldabhängigen Gitterkonstanten

$$a_0 = \sqrt{2\Phi_0/\sqrt{3}B} \quad (2.8)$$

aus. Um einen Eindruck von der Größenordnung des Gitterabstandes zu erhalten, ist a_0 als Funktion des angelegten Feldes in Abb. 2.2 dargestellt.

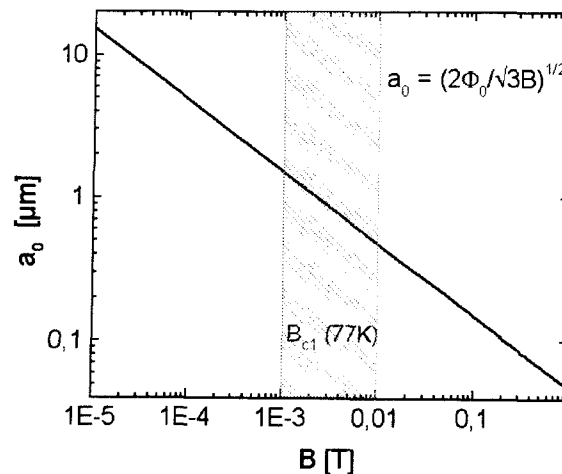


Abb. 2.2: Abstand der Flußfäden als Funktion der angelegten magnetischen Induktion.

Wird nun auf das Flußfadengitter eine Kraft ausgeübt, z.B. durch eine Lorentz-Kraft (aufgrund eines angelegten Stromes) oder aber einen Temperatur- oder Magnetfeldgradienten, so führt dies zu einer Bewegung der Flußfäden im Supraleiter (Abb. 2.3). Die Bewegung erzeugt Dissipation. Zum einen entsteht durch die Wanderung des Flusses ein zeitlich variierendes elektrisches Feld, welches die normalleitenden Teilchen beschleunigt, und damit Energie verbraucht. Zum anderen kommt es bei der Bewegung der normalleitenden Materie zum Aufbrechen und Kondensieren von Cooperpaaren mit charakteristischen inelastischen Streuzeiten $\tau_{in} \approx 10^{-9}$ s [Lah97]. Geschieht dies hinreichend schnell, treten Nichtgleichgewichtszustände auf, die zu einer Abgabe von Energie an das Material führen. Als Folge dieser direkt einsetzenden dissipativen Effekte wäre der maximale dissipationsfreie Strom (kritischer Strom I_c) für einen idealen Supraleiter 2. Art gleich Null, d.h. $I_c = 0$.

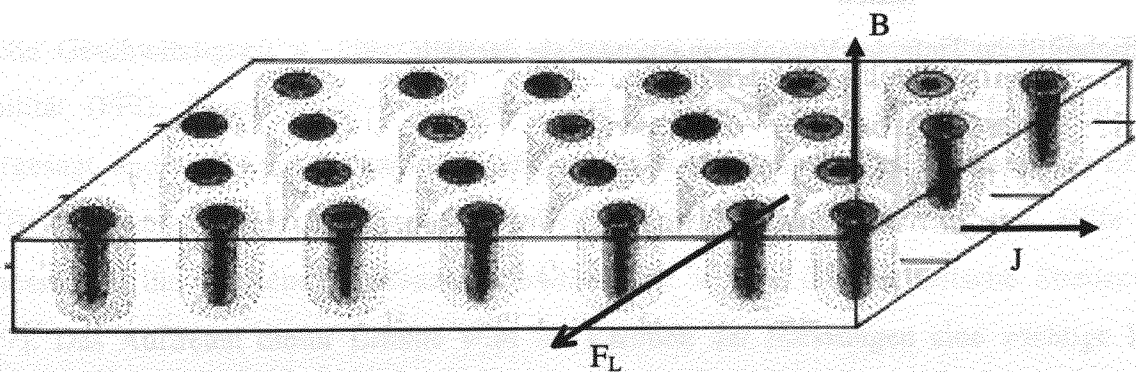


Abb. 2.3. Flußfadengitter eines Typ-II Supraleiters im Magnetfeld [Buc90].

Die Wanderung der Vortices wird in realen Supraleitern jedoch bis zu einem Schwellwert $I_c > 0$ durch die attraktive Wechselwirkung der Vortices mit Haftzentren (Vortex-Pin-Wechselwirkung), die zu einer Verankerung der Vortices führt, verhindert. Diese Haftzentren können Defekte (z.B. Korngrenzen oder künstliche Defekte) im Material sein, die normalleitend oder bei niedrigerer Temperatur supraleitend sind (extrinsische Verankerung), oder Potentialmulden aufgrund der Struktur des Supraleiters (z.B. die Ebenen zwischen den CuO_2 -Ebenen in YBCO) (intrinsische Verankerung).

Der kritische Strom ist dann üblicherweise durch das Gleichgewicht zwischen der Lorentzkraft \vec{F}_L und der durch geeignete Summation der elementaren Vortex-Pin-Wechselwirkungen f_p gegebenen Volumenhaftkraft \vec{F}_p bestimmt:

$$-\vec{F}_L = \vec{F}_p = \vec{J}_c \times \vec{B}. \quad (2.9)$$

Überschreitet die Stromdichte den kritischen Wert J_c , so setzt die Bewegung der Flußfäden (Flux-Flow-Zustand) ein, die zum Auftreten eines Widerstandes führt, der in erster Näherung linear vom angelegten Feld und vom Normalwiderstand ρ_n abhängt [Bar65].

Wichtig für das Verständnis von HTS-Materialien, die oft bei relativ hohen Temperaturen verwendet werden, ist, daß selbst ohne zusätzliche Kräfte aufgrund der endlichen Temperaturen ebenfalls eine Wanderung der Flußfäden bei $J < J_c$ auftreten kann. Sie wird verursacht durch die thermisch unterstützte Bewegung von einzelnen Flußfäden oder Flußfadenbündeln (Flux creep) [And62]. Die Wahrscheinlichkeit dafür ist proportional zu $\exp(-U/kT)$, wobei U die durchschnittliche Tiefe der Verankerungspotentiale darstellt.

2.2 Flux-Flow-Instabilität

Im vorigem Abschnitt ist gezeigt worden, daß die Bewegung von Flußfäden zu Dissipation im gemischten Zustand führt. Die Dissipation ist in erster Näherung durch einen konstanten, d.h. stromunabhängigen Widerstand gekennzeichnet. Allerdings existieren eine Reihe von Effekten, die ein nichtlineares Strom-Widerstandsverhalten hervorrufen können. So können z.B. die Josephson-Effekte, die in Kap. 2.3 beschrieben werden, zu nichtlinearem Verhalten führen. Eine andere Möglichkeit sind thermische Effekte bei hoher Dissipation, die zur lokalen Erwärmung der Probe über die kritische Temperatur T_c führen.

Eine sehr wichtige, oft aber unterschätzte Ursache für das Auftreten von Nichtlinearitäten bei relativ hohen Spannungen basiert auf der hohen Geschwindigkeit v der Vortices. Wird eine kritische Geschwindigkeit v^* überschritten, so kommt es zu einer sogenannten Flux-Flow-Instabilität (FFI). Diese wurde von Larkin und Ovchinnikov (LO) [Lar76] schon 1975 vorhergesagt, und beruht auf der endlichen, inelastischen Streuzeit τ_{in} . Der Nachweis des Effekts an YBCO gelang zuerst Doettinger [Doe94], [Doe95]. Lahl ermittelte mit Hilfe von Pulsmessungen die kritische Flußfadengeschwindigkeit v^* und die unelastische Streuzeit τ_{in} [Lah97]. Das Auftreten dieser Effekte wird im Rahmen der Messungen eine wichtige Rolle spielen.

2.2.1 Theorie der Flux-Flow-Instabilität

Vortex-Flux-Flow (FF) kann in erster Näherung als lineares Problem behandelt werden, d.h. der FF-Widerstand ist nahezu konstant:

$$R_{FF} = \frac{U}{I - I_c}. \quad (2.10)$$

Erst bei hohen Flußfadengeschwindigkeiten treten Nichtlinearitäten auf, die durch die endliche, unelastische Streuzeit τ_{in} hervorgerufen werden. Oberhalb einer kritischen Geschwindigkeit v^* führt die Änderung des Zustands, die durch die Flußfäden bzw. aufgrund der endlichen elastischen Streuzeit hervorgerufen wird, zu einem gestörten supraleitenden Zustand, der dem

normalen ähnelt [Kle85]. Im Folgenden soll dieser Effekt und die dies beschreibende Theorie von LO erläutert werden.

Ein Vortex oder auch Flußwirbel enthält ein Flußquant Φ_0 , das durch supraleitende Ringströme abgeschirmt wird. Das Feld im Kern variiert dabei über die Längenskala der London-Eindringtiefe λ_L . Im Ruhezustand ist die Dichte der Cooperpaare im Kern des Flußschlauches Null und steigt auf der Längenskala ξ auf den Wert n_∞ an (Abb. 2.4).

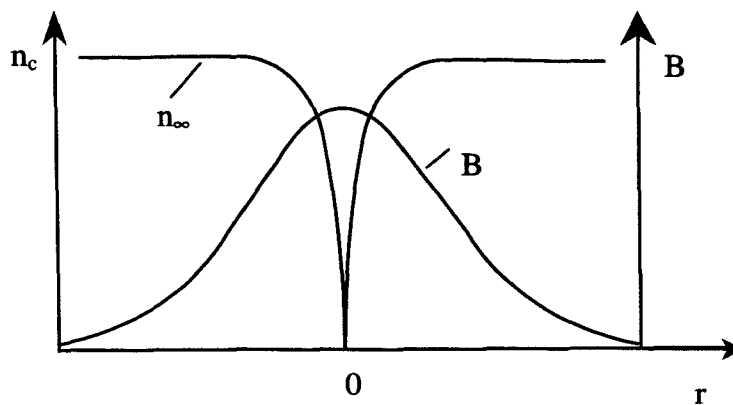


Abb. 2.4: Örtliche Variation von Cooperpaardichte und Magnetfeld für einen ebenen Schnitt durch einen Vortex.

Wenn ein Flußfaden sich mit der Geschwindigkeit v durch einen Supraleiter bewegt, bricht er die Cooperpaare auf. Die entstehenden Quasiteilchen rekombinieren nach Durchlaufen des Vortex gemittelt nach einer charakteristischen inelastischen Streuzeit. Aufgrund der endlichen Zeiten der Übergänge werden die Cooperpaardichte im Kern sowie die Quasiteilchendichte außerhalb des Kerns erhöht. Der Anteil zusätzlicher Cooperpaare innerhalb bzw. Quasiteilchen außerhalb des Vortextkerns nimmt mit zunehmender Geschwindigkeit der Vortices zu, d.h. je größer die Geschwindigkeit des Flußfadens ist, desto kleiner wird der normalleitende Kern (Abb. 2.5).

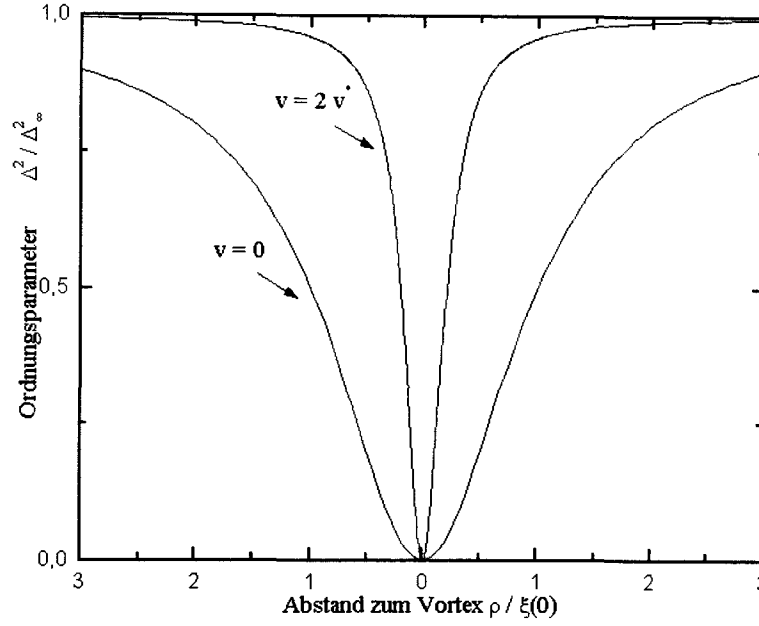


Abb. 2.5: Räumliche Abhängigkeit des Ordnungsparameters für verschiedene Vortex-Geschwindigkeiten v .

Die Veränderung des Flußfadenprofils kann auch durch die Änderung des Ordnungsparameters beschrieben werden. Quasiteilchen (QP) sind aufgrund der Andreev-Reflektion an der Kerngrenze im Kern gefangen. Im elektrischen Feld (erzeugt durch die FF-Bewegung) werden die QP beschleunigt und erhöhen dabei ihre Energie. Wenn sie die Energie der Energielücke erreichen, können sie in die den normalleitenden Kern umgebende supraleitende Phase diffundieren, d.h. die Anzahl der QP im Kern und damit die Depression des Ordnungsparameters reduziert sich. Der Ordnungsparameter eines Vortex kann nun nach LO durch

$$\Delta^2(\rho) = \Delta_\infty^2 \left(\frac{\rho^2}{\rho^2 + \xi^2(v)} \right) \quad (2.11)$$

beschrieben werden, wobei ρ der Abstand zum Vortexzentrum ist und für die geschwindigkeitsabhängige Kohärenzlänge $\xi(v)$ gilt:

$$\xi^2(v) = \frac{\xi^2(0)}{1 + \left(\frac{v}{v^*} \right)^2}, \quad (2.12)$$

mit
$$\xi^2(0) = \frac{\pi D}{8(T_c - T)}. \quad (2.13)$$

Dabei bezeichnen $D = v_F l / 3$ den Diffusionskoeffizienten, v_F die Fermigeschwindigkeit und l die mittlere freie Weglänge der Quasiteilchen.

Für den viskosen Dämpfungskoeffizient der Vortexbewegung η gilt dann [Lar73]:

$$\eta(v) = \eta(0) \frac{1}{1 + \left(\frac{v}{v^*}\right)^2} \quad (2.14)$$

mit

$$\eta(0) = 0,45 \frac{\sigma_n T_c}{D} \left(1 - \frac{T}{T_c}\right)^{1/2}, \quad (2.15)$$

wobei σ_n die Leitfähigkeit im normalleitendem Zustand ist.

Damit wird die Dämpfungskraft $F_D = \eta(v) \cdot v$ maximal bei $v = v^*$ (Abb. 2.6).

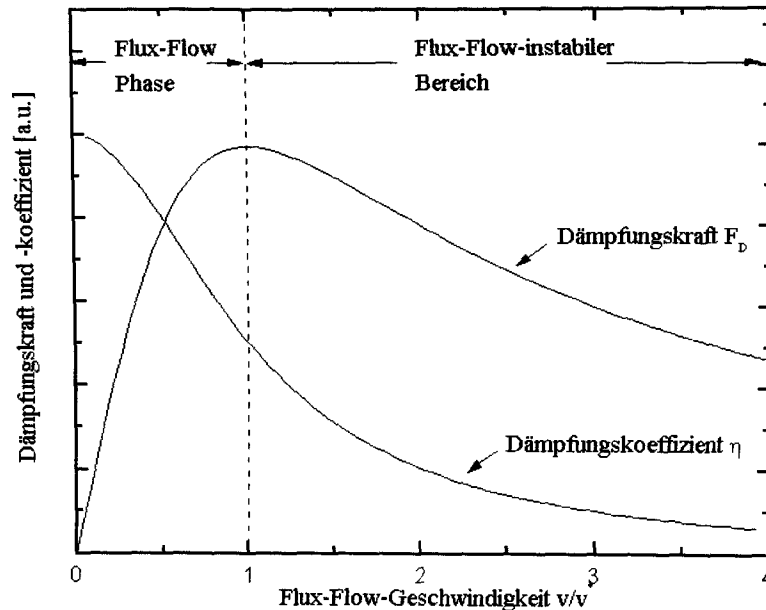


Abb. 2.6: Abhängigkeit der Dämpfungskraft und des Dämpfungskoeffizienten von der Flußfadengeschwindigkeit. Überschreitet die Flußfadengeschwindigkeit die kritische Geschwindigkeit, so wird der Flux-Flow-Zustand instabil.

Ab der kritischen Geschwindigkeit v^* kann somit die Lorentzkraft $F_L = |\vec{J} \times \vec{B}|$ nicht mehr durch die Dämpfungskraft F_D ausgeglichen werden und die Vortices beschleunigen sich selbstständig, bis sie den supraleitenden Zustand zerstören. Dieser Vorgang wird mit dem Begriff *Flux-Flow-Instabilität* bezeichnet.

Die kritische Flußfadengeschwindigkeit ist nach (LO) gegeben durch:

$$v^* = \frac{D^{1/2} [14\zeta(3)]^{1/4} \left(1 - T/T_c\right)^{1/4}}{(\pi\tau_{in})^{1/2}}, \quad (2.16)$$

wobei $\zeta(3) \approx 1,202$ die Riemann-Zeta-Funktion von 3 ist.

Die Strom-Spannungs-Kennlinie ist dann gegeben durch (LO):

$$J = \sigma_f E \left[\frac{1}{1 + \left(\frac{E}{E^*}\right)^2} + c \left(1 - \frac{T}{T_c}\right)^{1/2} \right]. \quad (2.17)$$

Dabei bezeichnen J die Stromdichte, $\sigma_f = 1/\rho_{FF}$ die charakteristische Flux-Flow-Leitfähigkeit, c eine Konstante der Größenordnung von 1, E das elektrische Feld und E^* das kritische elektrische Feld, das nach $E^* = v^* B$ mit der magnetischen Induktion B und der kritischen Flußfadengeschwindigkeit v^* verknüpft ist.

Das Phänomen der Vortexinstabilität ist experimentell in konventionellen Supraleitern [Kle85] und HTSL [Doe94] beobachtet worden. Für den Gültigkeitsbereich der quantitativen Berechnungen gilt jedoch (LO):

1. Thermische Effekte müssen vernachlässigbar sein, d.h. jegliche Wärmeenergie muß effektiv sowohl aus dem Kristallgitter als auch aus dem Quasiteilchensystem wegtransportiert werden. Dies ist erfüllt, wenn der Supraleiter im guten thermischen Kontakt mit dem Wärmebad ist und wenn für die Streuzeit der Quasiteilchen untereinander τ_{QP} und die Streuzeit der Quasiteilchen mit den Phononen τ_{Ph} gilt: $\tau_{QP} \geq \tau_{Ph}$ [Lah97].
2. Die Nichtgleichgewichtsverteilung der Quasiteilchen muß homogen über den gesamten Supraleiter verteilt sein. Dieses ist gegeben, sobald der Weg, den die Flußfäden in der inelastischen Streuzeit τ_{in} mit der kritischen Geschwindigkeit v^* zurücklegen, größer ist als der Abstand der Flußfäden a_0 :

$$v^* \tau_{in} > a_0 = 1,075 \sqrt{\Phi_0/B}. \quad (2.18)$$

Hieraus ergibt sich ein kritisches Feld B^* , ab dem diese Bedingung erfüllt und somit v^* unabhängig vom Magnetfeld ist. Da aber auch bei kleineren Feldern ($B < B^*$) FFI auftreten, muß hier zumindest $v^* \tau_{in} = a_0$ erfüllt sein. Daher wird für $B < B^*$ eine Magnetfeldabhängigkeit $v^* \propto 1/\sqrt{B}$ gefordert und experimentell beobachtet [Doe95, Lah97].

Insgesamt ergibt sich daher:

$$v^* \propto 1/\sqrt{B} \quad \text{für} \quad B < B^* \quad (2.19)$$

$$\text{und} \quad v^* = \text{const.} \quad \text{für} \quad B^* < B < B_{c2}. \quad (2.20)$$

Die experimentell beobachtete relevante Größe, die den Einsatz der FFI charakterisiert, ist die kritische Spannung U^* , bei der eine starke, meist sprunghafte Zunahme der Spannung einsetzt. Der Spannungsabfall im der FFI vorgeschalteten FF-Bereich wird durch die 2. Josephsongleichung (s. Kap. 2.3.1, Gl. 2.26) beschrieben.

$$\frac{d\phi}{dt} = \frac{2e}{\hbar} U \quad (2.21)$$

ϕ bezeichnet dabei die Phasendifferenz zwischen zwei beliebigen Punkten im Supraleiter. Davon ausgehend, daß ein sich in der Zeit τ bewegendes Flußfaden eine Phasenänderung um 2π bewirkt, erzeugen N Flußfäden eine Spannung

$$U = N \frac{\hbar}{2e} \frac{2\pi}{\tau} = N \Phi_0 \frac{v}{w} = n \Phi_0 v l = B v l \quad (2.22)$$

wobei w die Distanz ist, die die Flußfäden zurücklegen, l die Strecke, über die die Spannung abfällt und $n = N/wl$ die Flächendichte der Flußfäden.

Damit ergibt sich für die kritische Spannung $U^* = v^* B l$ in den unterschiedlichen Feldbereichen:

$$U^* \propto \sqrt{B} \quad \text{für} \quad B < B^* \quad (2.23)$$

$$\text{und} \quad U^* \propto B \quad \text{für} \quad B^* < B < B_{c2}. \quad (2.24)$$

2.3 Josephson- und Flux-Flow-Kontakte

2.3.1 Josephson-Gleichungen

Besteht eine schwache Kopplung (weak link) zwischen zwei Supraleitern, die durch eine Barriere voneinander getrennt sind (Abb. 2.7), so können sie zwar Cooperpaare austauschen, der Ordnungsparameter, d.h. die Dichte der supraleitenden Elektronenpaare, wird jedoch am Kontakt unterdrückt. Die starre Phasenkorrelationen der makroskopischen Quantenensemble in den beiden supraleitenden Bereichen führen an der Barriere zu interessanten Phänomenen, die Josephson [Jos62] 1962 erstmals in einer Theorie beschrieb. So kann ein supraleitender Tunnelstrom I_s von Cooperpaaren über den Kontakt (Josephson-Kontakt) fließen, der von der Phasendifferenz φ zwischen den beiden Supraleitern abhängt (1. Josephson-Gleichung):

$$I_s = I_c \sin \varphi, \quad (2.25)$$

mit $\varphi = \theta_2 - \theta_1$, den Phasen $\theta_{1,2}$ der Cooperpaarwellenfunktionen in Supraleiter 1 bzw. 2 und dem kritischen Strom I_c , welcher sich aus der Kontaktgeometrie und der „Durchlässigkeit“ der Barriere ergibt.

Liegt nun eine Spannung U am Kontakt an, so wird ein Wechselstrom erzeugt, dessen Frequenz ω von dieser Spannung abhängt (2. Josephson-Gleichung):

$$\omega = 2\pi\nu = \frac{d\varphi}{dt} = \frac{2e}{\hbar} U. \quad (2.26)$$

Hierbei ist $2e$ die Ladung eines Cooperpaares.

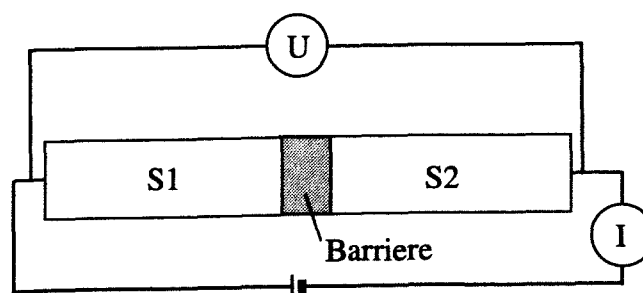


Abb. 2.7: Skizze eines Josephson-Kontaktes, bestehend aus zwei supraleitenden Elektroden und einer Barriere.

2.3.2 RCSJ-Modell

Die beiden Josephson-Gleichungen Gl. (2.24) und (2.25) beschreiben nur den Idealfall. Um das reale Verhalten eines Kontaktes genauer beschreiben zu können, müssen noch andere Beiträge zum Strom in Betracht gezogen werden. Nach Steward [Ste68] und McCumber [McC68] setzt sich der Strom I_{dc} über reale Kontakte aus dem Suprastrom $I_s = I_c \sin \varphi$, sowie einem resistiven und kapazitiven Beitrag zusammen (Abb. 2.8). Der resistive Beitrag, $I_n = U(t)/R(U)$, resultiert aus dem normalleitenden Tunnelstrom über den Kontakt oder einem normalleitenden Kurzschluß (,Shunt‘). Der kapazitive Beitrag wird durch den Verschiebungsstrom $I_v = C dU/dt$ aufgrund der Kapazität der Barriere verursacht.

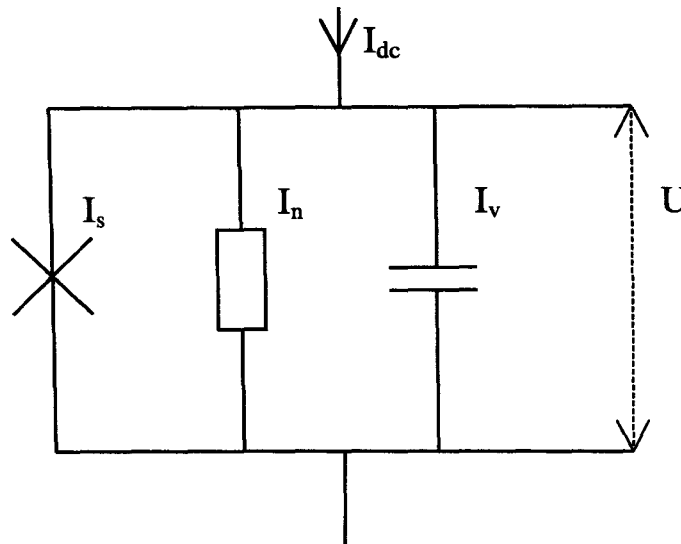


Abb. 2.8: Ersatzschaltbild eines realen Josephson-Kontaktes (RCSJ-Modell).

Daher ergibt sich der Gesamtstrom [McC68]:

$$I_{dc} = I_c \sin \varphi + \frac{U(t)}{R(U)} + C \frac{dU(t)}{dt}. \quad (2.27)$$

Setzt man nun im RCSJ- oder vereinfacht RSJ-(resistively shunted junction) Modell ein konstantes $R(U) = R_n$ ein, wobei R_n der Widerstand des Kontaktes im normalleitenden Zustand ist, und normiert man weiterhin Gleichung (2.26), so erhält man sich unter Verwendung von Gleichung (2.25) einen Ausdruck für die Strom-Spannungs-Charakteristik realer Josephson-Kontakte:

$$\alpha = \beta_c \frac{d^2 \varphi}{d\tau^2} + \frac{d\varphi}{d\tau} + \sin \varphi, \quad (2.28)$$

wobei $\alpha \equiv \frac{I_{dc}}{I_c}$, $\tau \equiv \omega_c t$, $\beta_c \equiv \frac{2eI_c R_n^2 C}{\hbar} = \omega_c R_n C$ und $\omega_c \equiv \frac{2eI_c R_n}{\hbar}$ definieren.

Der sog. Steward-McCumber-Parameter β_c beschreibt dabei den Einfluß der Kapazität auf das Kontaktverhalten, d.h. er gibt an, ob die Kapazität C bei Frequenzen um die charakteristische Frequenz ω_c den Widerstand R_n kurzschließt. Für $\beta_c > 1$ überwiegt der kapazitive Anteil, was eine hysteretische I-U-Kennlinie zur Folge hat. Für $\beta_c < 1$ ist der Normalwiderstand dominant, was zu einem gedämpften Verhalten des Kontaktes führt (Abb. 2.9a).

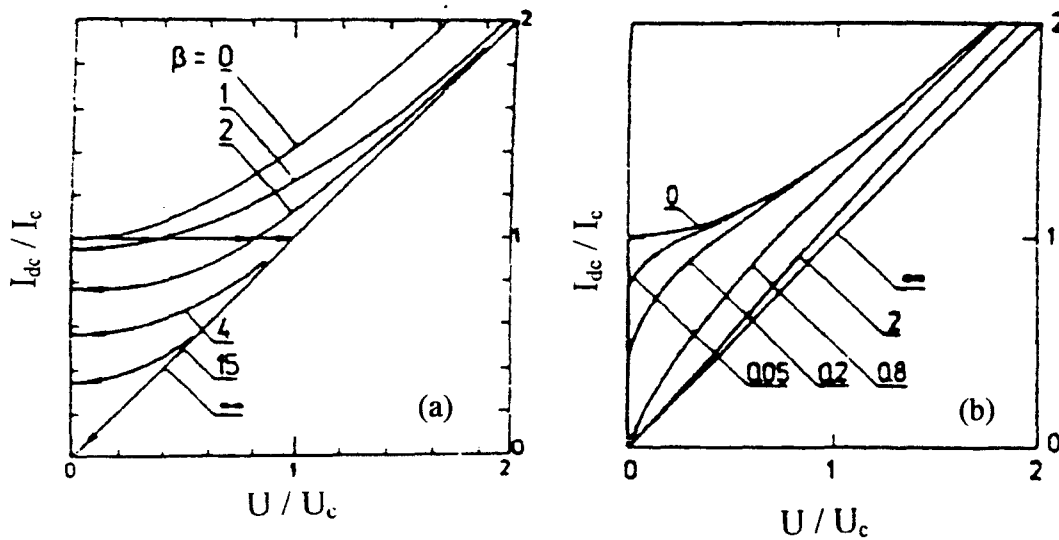


Abb. 2.9: Variation der Strom-Spannungs-Kennlinien für verschiedene Werte von (a) $\beta \equiv \beta_c$ und (b) γ (nach [Lik86]).

Berücksichtigt man zusätzlich noch Effekte hervorgerufen von thermischen Stromfluktuationen, so tritt ein zusätzlicher Strombeitrag $I_F = 2e2\pi k_B T / \hbar$ auf. Diese Effekte können z.B. durch thermisch aktivierten Phasenschlupf (TAPS) aufgrund der Bewegung von Flußfäden verursacht werden [Gro90], der die Phasenkopplung der beiden supraleitenden Elektroden zeitweise unterbrechen kann. Der Mechanismus ist von Bedeutung, wenn die thermische Energie $E_{th} = k_B T$ von der Größenordnung der Josephson-Kopplungsenergie $E_J = \hbar I_c / 2e$ ist, d.h. $\gamma = 2E_{th}/E_J \geq 1$. Dann wird die Phasenkohärenz verschlechtert, was zu einer Verringerung des kritischen Stromes I_c und einer Verrundung der Kennlinien führt (Abb. 2.9b). Für eine Temperatur $T = 80K$ und einen kritischen Strom $I_c = 10\mu A$ erhält man z.B. $\gamma = 4ek_B T / \hbar I_c \approx 1$.

2.3.3 Josephson-Kontakt im Magnetfeld

Die Abhängigkeit des kritischen Stromes vom Magnetfeld spielt eine entscheidende Rolle bei der Untersuchung von Josephson-Kontakten, da sie ein empfindliches Kriterium für die Homogenität der Barriere und die Stromverteilung in der Barriere darstellt. So läßt sich die Magnetfeldabhängigkeit als Betrag der Fouriertransformierten der Stromdichteverteilung berechnen, so daß von der $I_c(H)$ -Messung Rückschlüsse auf die Homogenität der Stromdichte gezogen werden können.

Deshalb werden in diesem Abschnitt zuerst das ideale Verhalten und Abweichungen infolge von Eigenmagnetfeldern vorgestellt. Anschließend werden Besonderheiten des Verhaltens von HTSL-Korngranzenkontakten im Magnetfeld beschrieben.

Ideales Verhalten eines Josephson-Kontaktes im Magnetfeld

Ein äußeres Feld beeinflusst den kritischen Strom durch den Kontakt gravierend. Für eine homogene Stromverteilung entlang der Barriere mit der Breite w und der Dicke b , und eine rechteckige Geometrie des Kontaktes gilt für den supraleitenden Tunnelstrom durch den Kontakt:

$$I_c\left(\frac{\Phi}{\Phi_0}\right) = I_c(0) \left| \frac{\sin \pi \frac{\Phi}{\Phi_0}}{\pi \frac{\Phi}{\Phi_0}} \right|. \quad (2.29)$$

Hierbei ist $\Phi = \mu_0 H w d$ der magnetische Fluß durch den Kontakt und $d = b + 2\lambda_L$ die Abmessung des effektiv vom Fluß durchdrungenen Kontaktbereiches (Abb. 2.10). Die in Abb. 2.11 gezeigte resultierende Magnetfeldabhängigkeit des kritischen Stroms wird wegen ihrer Ähnlichkeit zum Beugungsmuster am Einzelspalt Fraunhofer-Muster genannt. Die Periode entspricht idealerweise einem Flußquant Φ_0 , d.h.

$$\Delta H_0 = \frac{\Phi_0}{\mu_0 w d} \approx \frac{\Phi_0}{\mu_0 w 2\lambda_L}, \quad (2.30)$$

wenn $b \ll 2\lambda_L$ angenommen werden kann.

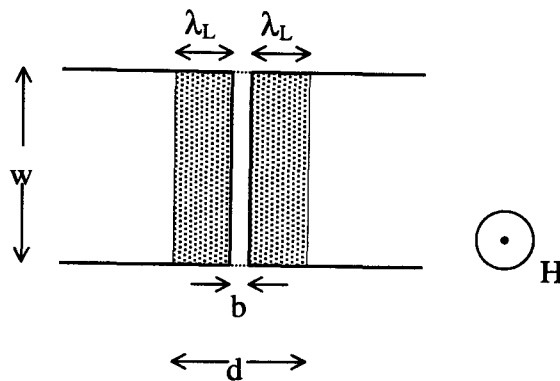


Abb. 2.10: Schematische Darstellung eines Kontaktes mit rechteckiger Geometrie, wobei b die Dicke und w die Breite der Barriere ist. Der vom Feld durchdrungene Bereich wird mit $d = b + 2\lambda_L$ bezeichnet.

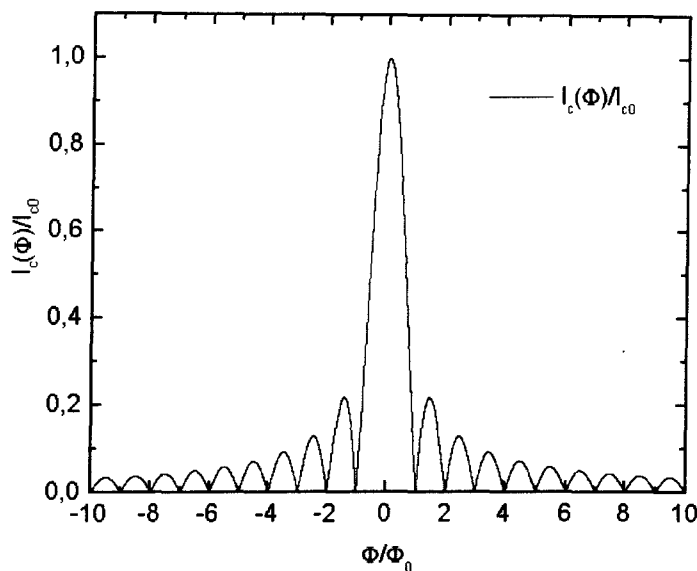


Abb. 2.11: Magnetfeldabhängigkeit des kritischen Josephson-Stromes für einen idealen Kontakt. Φ ist der magnetische Fluß im Kontakt $\Phi = \mu_0 H w d$.

Abweichungen vom idealen Magnetfeldverhalten

Bisher wurde der Einfluß des äußeren Magnetfeldes auf einen idealen, schmalen Kontakt berücksichtigt. Aufgrund des Eigenfeldes können in realen Kontakten Abweichungen vom idealen Fraunhofer-Muster auftreten. So erzeugt der Suprastrom durch einen Josephson-Kontakt ein nicht unerhebliches Eigenfeld, welches Abschirmströme anwirft, die den Josephson-Strom zusätzlich so unterdrücken, daß er auf die Ränder des Kontaktes konzentriert ist. Die

charakteristische Länge für den Abfall des Suprastroms vom Kontaktrand zur Mitte hin ist durch die sogenannte Josephson-Eindringtiefe definiert:

$$\lambda_j = \sqrt{\frac{\hbar}{2e\mu_0 J_c d}}, \quad (2.31)$$

mit der kritischen Stromdichte J_c .

Ist die Breite des Kontaktes w schmaler als λ_j , können die Eigenfelder vernachlässigt werden. Im Nullfeld gibt es dann eine nahezu homogene Verteilung des Stromes über die Breite des Kontaktes. Man spricht von schmalen Kontakten, englisch ‚small junctions‘.

Im anderen Fall, $w > \lambda_j$, liegen breite Kontakte („long junctions“) vor, in denen die Eigenfelder das Kontaktverhalten beeinflussen. In Abb. 2.12 ist die Magnetfeldabhängigkeit des kritischen Stromes für einen breiten Kontakt ($w = 10\lambda_j$) wiedergegeben. In diesem Fall gibt es zum einen bei kleinen Feldern einen linearen Abfall, da kein Fluß eindringen kann, zum anderen existieren metastabile Zustände in der Umgebung der Minima. Diese Mehrdeutigkeit läßt sich durch Wechselwirkungen zwischen Flußfaden und Kante des Kontaktes erklären. Eine Potentialbarriere behindert das Eindringen und das Verlassen des Kontaktes, so daß hysteretisches Verhalten auftritt.

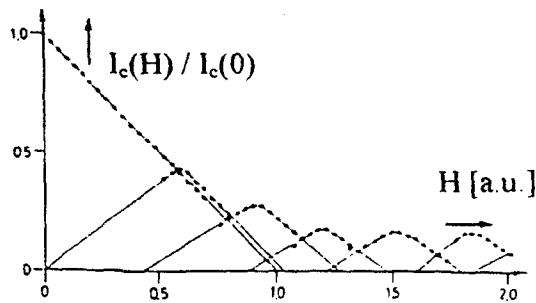


Abb. 2.12: Magnetfeldabhängigkeit des kritischen Josephson-Stromes für einen breiten Kontakt mit $w = 10\lambda_j$ [Bar82].

Schaut man sich in Abb. 2.13 die Abhängigkeit der Josephson-Eindringtiefe λ_j von der kritischen Stromdichte an, so erkennt man, daß der Kontakttyp stark vom kritischen Strom, und damit u.a. von der Temperatur abhängt. D.h. abhängig von der Temperatur kann ein Kontakt ein schmaler ($w < \lambda_j$) oder breiter ($w > \lambda_j$) Kontakttyp sein.

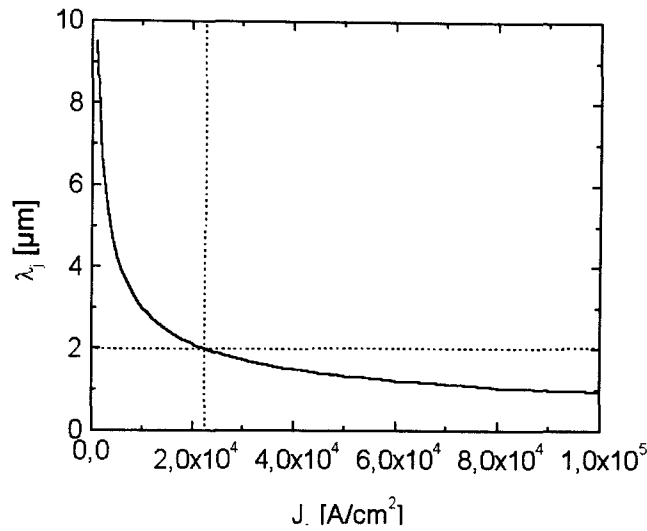


Abb. 2.13: Abhängigkeit der Josephson-Eindringtiefe λ_J von der kritischen Stromdichte J_c (s. Gl. 2.30). Die in dieser Arbeit typischer Weise verwandte Kontaktbreite von $2\mu\text{m}$ ist durch eine Linie gekennzeichnet. Die dazu gehörende Unterscheidung zwischen schmalem und breitem Kontaktverhalten wird durch $J_c = 2,3 \cdot 10^4 \text{ A/cm}^2$ definiert.

HTSL-Korngrenzenkontakte im Magnetfeld

Bisher ist der ideale Fall von konventionellen, planaren Tunnelkontakten betrachtet worden. Im Falle von

Korngrenzenkontakten auf der Basis von dünnen HTSL-Filmen liegt jedoch eine andere Geometrie vor, da die Barriere senkrecht zum Substrat angeordnet ist, und das Verhältnis zwischen Breite und Dicke der Elektroden sehr groß ist. Es besteht dann eine reziproke quadratische Abhängigkeit der Periode $\Delta H_0 \propto 1/w^2$ anstatt der üblichen reziproken Abhängigkeit $\Delta H_0 \propto 1/w$ in vertikalen Kontakten (s. z.B. [Bar82]). Es werden nun die beiden Grenzfälle für dicke Filme und sehr dünne Filme betrachtet.

Ist der Film ausreichend dick ($wt \gg \lambda^2$), wird das Feld aufgrund des Meissner-Effektes beinahe vollständig aus dem Supraleiter in die Barriere verdrängt, und die Abschirmströme sind auf die Eindringtiefe beschränkt. In diesem Fall gilt der klassische Ansatz Gl. (2.29), wobei zusätzlich die Verstärkung des Feldes an der Barriere berücksichtigt werden muß. Letztere kann man z.B. durch die allgemein übliche Abschätzung erhalten, den Probenquerschnitt (entlang des Kontaktes) durch einen Ellipsoiden mit einem dem Probenquerschnitt entsprechenden Dicke-Breite-Verhältnis anzunähern. Dieses ergibt als feldverstärkenden Faktor einen Wert von $1.2w/t$.

Somit folgt für die Feldperiode [Ros91]:

$$\Delta H_0 = \frac{t}{1.2w} \frac{\Phi_0}{\mu_0 w 2\lambda_L} = \frac{\Phi_0 t}{1.2\mu_0 w^2 2\lambda_L}. \quad (2.32)$$

Es sollte hier darauf hingewiesen werden, daß dieser ‘klassische’ Ansatz einer Annäherung des Filmquerschnittes mittels eines Ellipsoiden problematisch und wahrscheinlich falsch ist, da neuere Messungen, u.a. eigene Ergebnisse in Ref. [Vau97], und Berechnungen zeigen, daß eine rechteckige Geometrie im Gegensatz zum Ellipsoid eine Singularität im Feld verursacht, und somit die angenommene Feldverdrängung durch planare Proben deutlich reduziert ist [Bra93] (Abb. 2.14).

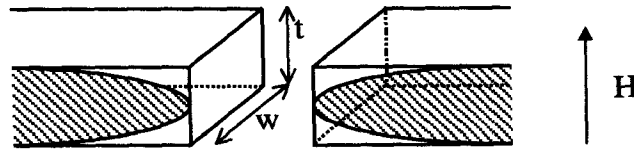


Abb. 2.14: Skizze eines Kontaktes mit rechteckigem und elliptischem Profil.

Im 2. Fall, dem sogenannten ‘thin film limit’, durchdringt das magnetische Feld den Supraleiter gleichmäßig, entmagnetisierende Effekte sind nicht mehr vorhanden. Das Kriterium für das Eintreten dieses Falles leitet sich aus der Bedingung ab, daß die Breite w der Elektroden in der Nähe des Kontaktes viel kleiner ist als die Eindringtiefe des Magnetfeldes [Lik72]

$$\lambda_{\text{eff}} = \lambda_L \coth\left(\frac{t}{2\lambda_L}\right). \quad (2.33)$$

Für dünne Filme ($t \ll \lambda_L$) ergibt sich $\lambda_{\text{eff}} (\approx \frac{\lambda_L^2}{t}) \gg w$ und damit die Bedingung $\lambda_L^2 \gg wt$.

Da in diesem Fall das Feld im Supraleiter gleich dem äußeren Feld ist, läßt unter Vernachlässigung der Abschirmströme im Kontakt die Periode des kritischen Stromes berechnen [Hum93]. Sie ist unabhängig von der Dicke des Filmes, aber wie im Falle der dicken Filmen proportional zu $1/w^2$ (s. auch [Ros91], [Vau96a]):

$$\Delta H_0 = 1.84 \frac{\Phi_0}{\mu_0 w^2}. \quad (2.34)$$

Eine Feldverstärkung am Kontakt kann in diesem Fall durch Flußfadenbarrieren bzw. -verankerung, das sog. Trapping von Flußfäden, am Rand der Elektroden verursacht werden [Vau97].

2.3.4 HTSL-Kontakte

Josephson-Effekte existieren zwischen schwach gekoppelten Supraleitern. In HTSL, die sich durch ihre Anisotropie und extrem kleine Kohärenzlängen auszeichnen, gibt es für die Ausbildung von Josephson-Kontakten verschiedene Ansätze. Zumeist wird die schwache Kopplung durch eine intrinsische oder aber künstliche Barriere, wie bei Korngrenzenkontakten (Stufen-, Bikristall- oder Biepitaxiekontakte) bzw. Rampenkontakten erzeugt. Es kann aber auch durch Flux-Flow-Mechanismen Josephson-ähnliches Kontaktverhalten erreicht werden [Sch95].

2.3.4.1 Korngrenzenkontakte

Aufgrund der extrem kurzen Kohärenzlänge der HTSL werden die elektrischen Eigenschaften durch eine Korngrenze stark beeinflusst. Es kann dabei zu einer schwachen Kopplung der durch die Korngrenze getrennten Supraleiterbereiche kommen, die u.a. zu einer drastischen J_c -Absenkung um mehrere Größenordnungen führen kann. Deshalb werden an dieser Stelle die verschiedenen Typen der in HTSL-Filmen vorkommenden Korngrenzen kurz vorgestellt. Weiterhin werden Modelle diskutiert, die das weak-link Verhaltens an der Korngrenze zu erklären versuchen, bevor die verschiedenen Korngrenzen-Kontakttypen besprochen werden.

Definition einer Korngrenze

Eine Korngrenze (KG) liegt vor, wenn zwei Einkristalle unterschiedlicher Orientierung ohne Lücke aufeinanderstoßen [Hir82]. Sie kann durch die Angabe von Drehachse und Drehwinkel beschrieben werden. In YBCO (HTSL-Kupraten) existieren vier verschiedene Typen von KG, die in Abb. 2.15 anhand der Ausrichtung der CuO_2 -Ebenen dargestellt sind.

Man unterscheidet zwischen Drehkorngrenzen (DKG) (Abb. 2.15a), bei denen die Drehachse senkrecht zur Ebene der Korngrenze steht, und Kippkorngrenzen (KKG), bei denen die Drehachse in der Ebene der Korngrenze liegt. Ist die Drehachse parallel zur c-Achse, spricht

man von einer in-plane gekippten KG (IPKKG) (Abb. 2.15d). Für YBCO erhält man bei einem Drehwinkel von 90° infolge der unterschiedlichen Längen der a- bzw. b- Achse sogenannte Zwillingskorngrenzen. Diese wirken jedoch nicht als weak-link [Cha91]. Im Fall der Drehachse in der a-b Ebene gibt es die der Basalebene zugewandte KKG (BZKKG) (Abb. 2.15b) und die symmetrische Kippkorngrenze (SKKG) (Abb. 2.15c), bei der die Ebene der KG als Spiegelebene fungiert.

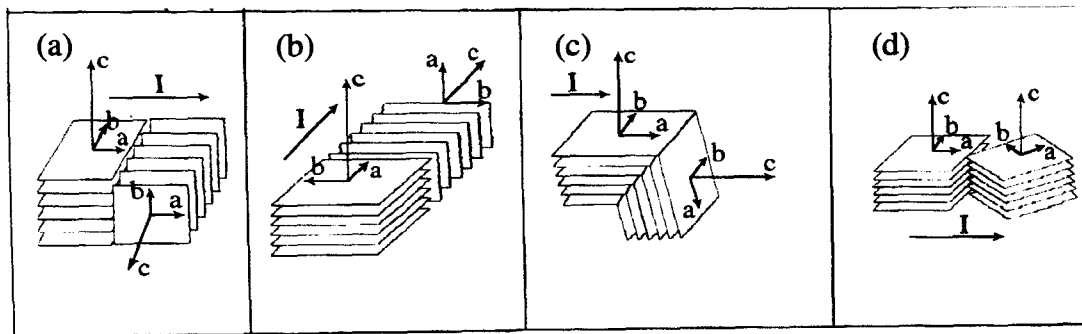


Abb. 2.15: Korngrenzen in HTSL-Filmen: (a) Drehkorngrenze (DKG) (‘twist grain boundary’), (b) der Basalebene zugewandte Kippkorngrenze (BZKKG) (‘basal-plane-faced tilt grain boundary’), (c) symmetrische Kippkorngrenze (SKKG) (‘symmetrical tilt grain boundary’), (d) in-plane gekippte Korngrenze (IPKKG) (‘in-plane tilt grain boundary’) (nach [Kot97]).

Defekte in der Korngrenze

Je nach Art der KG kommt es zu Schrauben- oder Stufenversetzungen an der KG. Im Idealfall hängt die Dichte D der Versetzungen bei kleinen KG-Winkeln nach dem Versetzungsmodell vom Misorientierungswinkel ϑ der beiden aneinanderstoßenden Körner und vom Burgers-Vektor \vec{b} der Versetzung ab:

$$D = |\vec{b}| / \vartheta. \quad (2.35)$$

Jede Versetzung stellt im Idealfall (keine Ausscheidung oder Fremdphasenbildung) einen Defekt der Größenordnung der Kohärenzlänge ξ (in YBCO: $\xi_{a,b} \approx 3\text{nm}$) dar, der zu einer lokalen Unterdrückung des Ordnungsparameters führt. Ab einem Verkippungswinkel von $\vartheta = 10\text{-}20^\circ$ überlappen sich die Versetzungen, so daß eine vollständige Unterdrückung der Supraleitung auftritt [Cha91]. Dies ist der Übergang zwischen Kleinwinkel- (KWKG) und

Großwinkelkorngrenzen (GWKG). Bei größeren Winkeln sind die beiden Kristallite völlig unabhängig voneinander und das Versetzungsmodell ist nicht mehr anwendbar.

Auch im Falle der GWKG [Her93] tritt ein periodisches Spannungsfeld an der KG auf. Bei der Basalebene zugewandten gekippten KG wird es durch das Nichtaufeinanderpassen der YBCO-Einheitszellen ($c \neq 3 \cdot a$) erzeugt, bei symmetrisch gekippten KG durch die verschiedene Größe und Anordnung der Atome in den 3 Untereinheiten der YBCO-Einheitszelle. Die Spannungsfelder an der Korngrenze führen aufgrund der hohen Beweglichkeit der Sauerstoffatome zu einer Reduktion der Zahl der besetzten Sauerstoffgitterplätze und der Ordnung der Struktur an der Korngrenze. Dies wirkt sich auf T_c [Cav90b, Jor90, Jor91] und die elektrischen Eigenschaften aus und kann u.a. durch Trimmen des kritischen Stromes des Kontaktes in O_2 -Atmosphäre nachgewiesen werden [Rus90, Gro91b].

Allerdings können die Korngrenzen nicht die alleinige Ursache für das weak-link-Verhalten sein. So wurde an 90° BZKKG keine Unterdrückung des kritischen Stromes gefunden, wobei allerdings die kritische Stromdichte in den Körnern nur bei $j_c = 10^3 \text{ A/cm}^2$ lag [Bab90]. Auch wurde bei 90° BZKKG und 90° SKKG nur eine schwache $I_c(B)$ -Abhängigkeit festgestellt [Eom92, Lew94], wobei hier eine Erklärung im Kurzschluß der Korngrenzen über verdrehte Nanofacetten liegen könnte [Eom92].

Dieses läßt die Vermutung zu, daß die schwache Kopplung nicht allein durch die Korngrenze, sondern vielmehr durch die komplizierte Struktur und Morphologie an der Korngrenze begründet wird. So wurde bei Korngrenzen an Stufen immer weak-link-Verhalten festgestellt, da sie eine größere Defektdichte aufweisen als z.B. KG auf planaren Substraten [Her95]. Im Falle von Korngrenzen an Stufen treten Versetzungsdichten von $(1,6-11,1) \cdot 10^4 \mu\text{m}^{-2}$ anstelle der im Idealfall erwarteten Dichte von $0,2 \cdot 10^4 \mu\text{m}^{-2}$ auf. Eine Erklärung für die unterschiedliche Defektdichte in planaren Filmen und an Stufen liegt in der unterschiedlichen Oberfläche des Substrates begründet. Zum einen ist sie durch den Ätzprozeß rauher, zum anderen bildet die schräge Kante keine perfekte Oberfläche, sondern eine Treppenstruktur, auf der die Schicht zur Seite und nach oben wächst. Weiterhin können sich an den Stufen zusätzliche CuO-Ebenen bilden, die zu 124-Stapelfehlern führen. Diese erhöhen den Abstand zwischen den CuO_2 -Ebenen von 0,4 auf 0,7 nm. Auch schließt an defektfreien Stellen die BaO-Schicht die Körner ab, d.h. es existieren keine kompletten Einheitszellen. All dies führt wiederum zur Gitterdeformation und damit zu möglichem lokalem Sauerstoffverlust.

Stromtransportmodelle

Für die Erklärung des Stromtransportes in Korngrenzen gibt es noch kein etabliertes Modell. Im Moment werden zwei unterschiedliche Modelle favorisiert: (i) Das Filament-Modell [Moe93] und (ii) das intrinsisch-ge-shunteter-Kontakt (ISJ, ‚intrinsically shunted junction‘)-Modell [Gro91a, Gro92, Hal92] (s. Abb. 2.16). Im Rahmen des Filament-Modells wird die KG als Parallelschaltung vieler supraleitender Strompfade betrachtet, die teilweise über normalleitende Brücken kurzgeschlossen werden. Dabei besteht der Bereich um die Korngrenze aus ungeordneten supraleitenden Bezirken (Filamenten) und sehr ungeordneten resistiven Bezirken (s. Abb. 2.16a). Die Unordnung wird hierbei auf starke lokale Variationen des Sauerstoffgehaltes zurückgeführt. Treffen zwei Filamente an der eigentlichen Korngrenze zusammen, entsteht ein supraleitender Strompfad. Ansonsten bilden die resistiven Bereiche einen normalleitenden Kurzschluß. Der Gesamtstrom setzt sich nun aus Tunnelströmen sowie supraleitenden und normalleitenden Kurzschlußströmen zusammen.

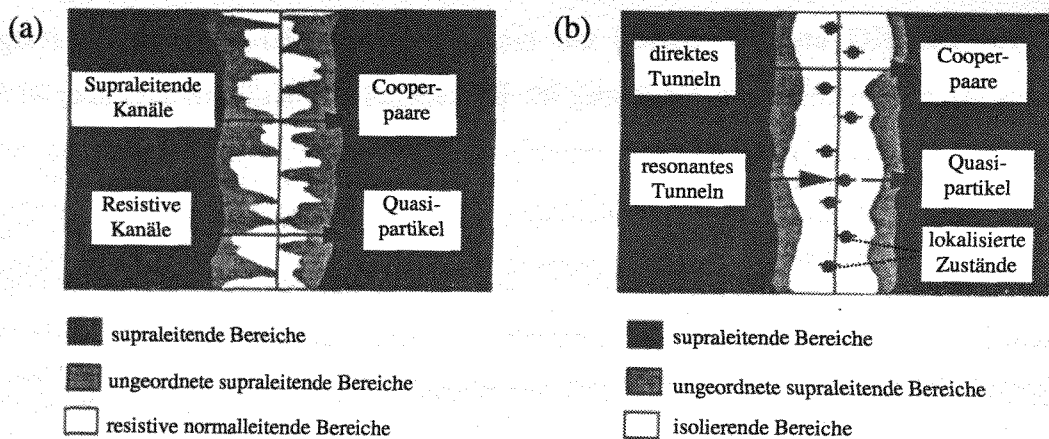


Abb. 2.16. Modelle zum Stromtransport in HTSL-Korngrenzenkontakten: (a) Filament-Modell, (b) Intrinsisch-ge-shunteter-Kontakt (ISJ)-Modell [Gro96].

Im ISJ-Modell wird die KG als isolierenden Schicht beschrieben, die eine hohe Dichte ($n_L \approx 10^{21} \text{ cm}^{-3}$) von lokalisierten Zuständen besitzt [Hal92]. Aufgrund dieser hohen Dichte lokalisierter Zustände wird der normale Quasipartikelstrom durch resonantes Tunneln dominiert. Dagegen wird durch die starke Coulomb-Abstoßung ($>0,1 \text{ eV}$) das resonante Tunneln von Cooper-Paaren stark unterdrückt, der supraleitende Tunnelstrom geschieht daher hauptsächlich über direktes Tunneln. So können Korngrenzenkontakte im Rahmen dieses Modelles als

intrinsisch kurzgeschlossene Kontakte betrachtet werden, wobei der resistive Kurzschluß durch den resonanten Tunnelkanal für Quasipartikel gegeben ist.

Beide Modellen werden durch entsprechende experimentelle Ergebnisse nahegelegt. Im Falle des Filament-Modells ist dies u.a. [Moe94], im Falle des ISJ-Modells u.a. [Win94, Mar95a, Mar95b, Yi96a].

2.3.4.2 Kontaktausführungen

Es existieren eine Reihe von unterschiedlichen Verfahren, durch die sich gezielt in HTSL-Filmen Korngrenzen generieren lassen. Einige der gängigsten Verfahren sollen hier kurz skizziert werden.

Bikristallkontakte:

Eine effektive Methode der HTSL-Korngrenzenkontaktherstellung basiert auf dem Zusammenfügen zweier Einkristalle unter unterschiedlicher Orientierung. Ein auf diesem sogenannten Bikristall epitaktisch abgeschiedener HTSL-Film wächst mit unterschiedlichen Orientierungen auf den verschiedenen Substratteilen auf. Dieser Kontakttyp heißt daher Bikristallkontakt [Dim88] (Abb. 2.17a). Dieses Verfahren erfordert keine besonderen Anstrengungen hinsichtlich der Filmdeposition. Allerdings lassen sich lediglich Kontakte entlang der vom Substrat vorgegebenen Korngrenze generieren.

Biepitaxiekontakten:

Im Falle dieses Kontakttyps wird in ähnlicher Weise wie bei den Bikristallkontakten die Epitaxie ausgenutzt [Wan93] (Abb. 2.17b). Durch das Aufbringen von geeigneten Pufferschichten kann gezielt eine Verdrehung (meist um 45°) der in-plane-Orientierung unterschiedlicher Schichtbereiche erreicht werden. An den Grenzflächen stoßen dann Filme unterschiedlicher in-plane-Orientierung zusammen und bilden so den gewünschten Kontakt. Der Nachteil dieser Kontakte liegt in den extrem kleinen I_c -Werten und Feldabhängigkeiten von I_c .

Stufenkontakte:

Diese Kontakte entstehen bei der Deposition eines HTSL-Filmes über eine Stufe im Substrat [Sim91] (Abb. 2.17c). Für die Ausbildung eines Stufenkontaktes muß sowohl epitaktisches Wachstum des Films auf der Stufenflanke gewährleistet sein, als auch die Stufe ausreichend steil sein, damit beim Wachstum der verschiedenen Bereiche an der Stufe Korngrenzen entstehen. Die genauen Bedingungen für die unterschiedlichen Substratklassen werden in Kap. 4.1.3.1 mit

Hilfe zweier Modelle diskutiert. Vorteil dieses Korngrenzenkontaktes ist die beliebige Plazierbarkeit, die für das Waferskalieren gefordert ist. Nachteilig ist sicherlich die komplizierte Herstellung von optimierten Stufen und die Tatsache, daß sich automatisch mindestens zwei Kontakte an der Stufe bilden (im Falle von Gräben sogar mindestens vier), an denen Josephson-Verhalten auftreten kann.

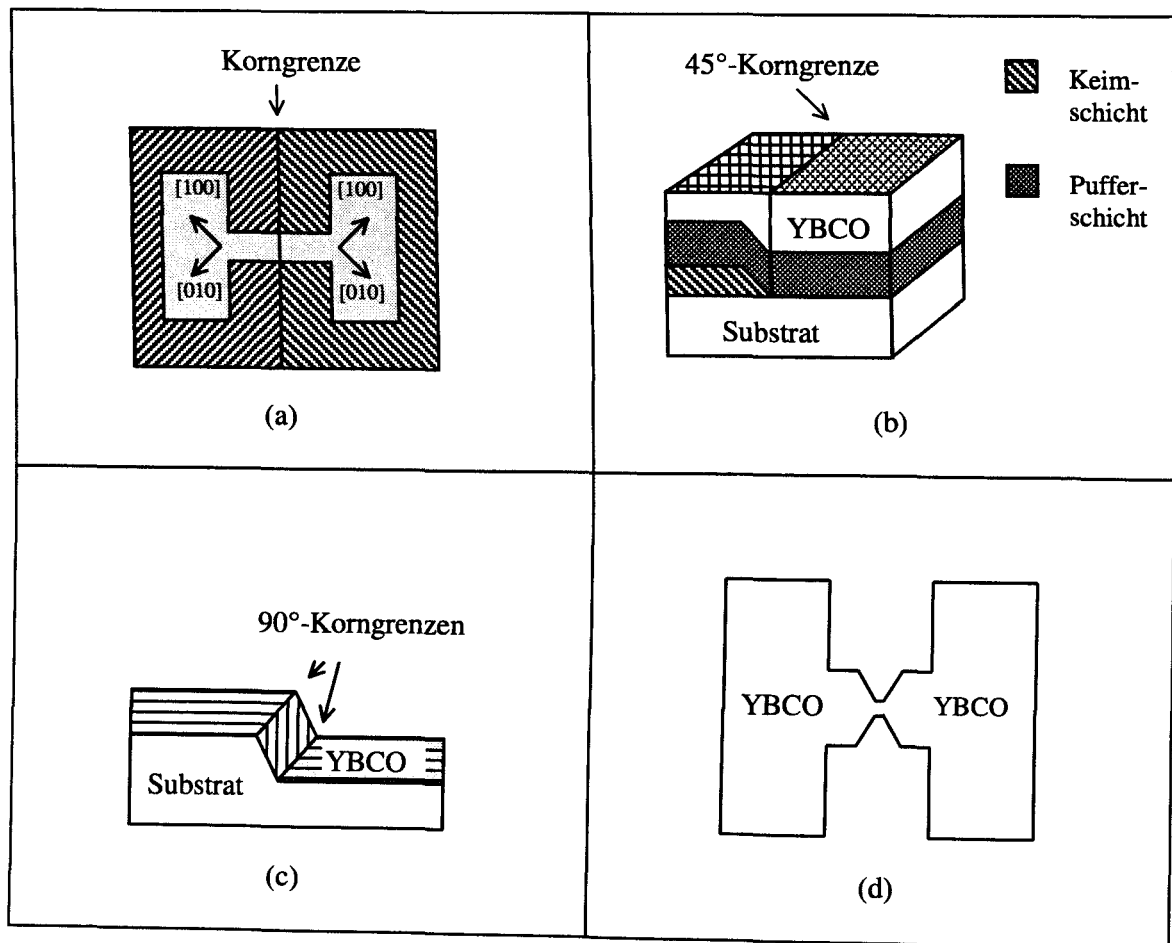


Abb. 2.17: Verschiedene Typen von HTSL-Kontakten: (a) Bikristallkontakt, (b) Biepitaxiekontakt, (c) Stufenkontakt, (d) Flux-Flow-Kontakt.

Flux-Flow Kontakte

Eine andere Art von Kontakten, die im Rahmen dieser Arbeit eine wichtige Rolle spielt und daher hier mit aufgeführt werden soll, sind Flux-Flow Kontakte (Abb. 2.17d). Sie stellen Kontakte ohne Korngrenzen und andere lokal die Supraleitung unterdrückende Einflüsse dar, die

ein auf einem anderen Prinzip beruhendes Josephson-ähnliches Verhalten zeigen. Dabei kann man zwischen ‚klassischen‘ Nanobrückenkontakten [And64] mit Kontaktbreite $w < \lambda$ und auf dem Prinzip der Flux-Flow-Instabilität (s. Abschn. 2.2) basierenden Kontakten mit $w > \lambda$ unterscheiden. Die Josephson-ähnlichen Effekte gründen sich in diesen Kontakten auf der Bewegung und damit der Dissipation von Abrikosov-Vortices bzw. Vortex-Antivortex-Paaren. Die Flußfäden (Vortices) entstehen dabei durch ein äußeres Feld oder den angelegten Strom, d.h. durch das Eigenfeld des eingepprägten Stromes I . Übersteigt die Stromdichte J den kritischen Wert J_c , laufen die Flußfäden auf Grund des Flußgradienten durch die Brücke. Im Falle von Vortex-Antivortex-Paaren annihilieren sich diese in der Brückenmitte. Für einen eingepprägten Strom $I > I_c$ ist in erster Näherung sowohl die Geschwindigkeit v der Flußfäden als auch die Anzahl n der Flußfäden proportional zum Strom I . Daher gilt für die Strom-Spannungs-Charakteristik $U \propto (I - I_c)^2$, d.h. die U-I-Kurve verläuft im Unterschied zum RSCJ-Modell parabolisch. Im Falle der Nanobrückenkontakte ist die Bewegung der Flußfäden kohärent, was zu einem Josephson-ähnlichen weak-link-Verhalten führt. Bei den FFI-Kontakten sorgt die Instabilität für ein Umschalten in den resistiven Bereich verbunden mit starker thermischer Belastung der Bereiche. Letzteres ist in Kap. 2.2 eingehend beschrieben.

3. Herstellung

Dieses Kapitel behandelt die technologischen Methoden der Fertigung von Einzelkontakten und SQUIDs auf der Basis von Flux-Flow- und Josephson-Stufenkontakten. Hierzu wird zuerst die Filmdeposition und anschließend die Technologie zur Strukturierung von Substrat, Pufferschicht und YBCO-Film beschrieben.

3.1 Schichtherstellung

Das Abscheiden der supraleitenden YBCO-Schichten und der Pufferschichten erfolgte im Rahmen dieser Arbeit mittels Hochdruck-dc-Magnetron-Kathodenzerstäubung, deren Prinzip zusammen mit der Anlage kurz erläutert wird. Danach wird auf die Eigenschaften und Charakterisierung der supraleitenden und isolierenden Materialien eingegangen.

3.1.1 Prinzip der Hochdruckkathodenzerstäubung

Zur Herstellung von dünnen supraleitenden HTSL und kompatiblen isolierenden Filmen bieten sich unterschiedliche Verfahren an: U.a. die Laser-Ablation (engl.: ‚pulsed laser deposition‘, PLD), metallorganische chemische Gasphasenabscheidung (MOCVD), Aufdampfen und Koverdampfen. Die Kathodenzerstäubung (engl.: ‚cathodic sputtering‘) ist für die Deposition von glatten, ausscheidungsfreien YBCO-Filmen besonders geeignet [Wör91], und bietet sich daher für die hier geforderte homogene Abscheidung über 2 Zoll an. In Abb. 3.1 ist ein Schema der verwandten Sputteranlage gezeigt.

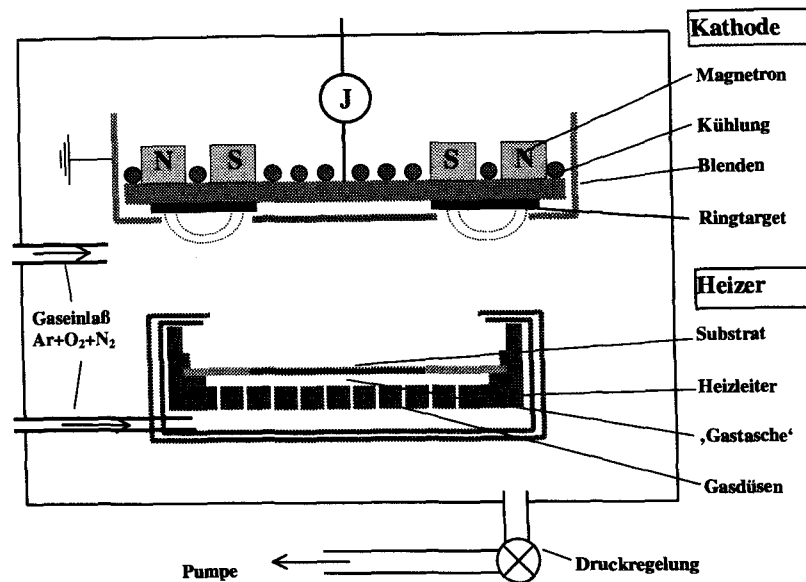


Abb. 3.1: Schematische Darstellung der Sputteranlage.

Bei der Kathodenzerstäubung (Sputtern) werden ähnlich wie beim Ionenstrahlätzen Teilchen von einem Target durch das Auftreffen von Ionen abgetragen, die dann auf dem Substrat zu einem dünnen Film kondensieren. Die Ionen des Sputtergases (meistens Argon oder Xenon) werden durch eine Gasentladung zwischen zwei Elektroden erzeugt, die durch Gleich- (dc-Sputtern oder gepulstes dc-Sputtern (mf-Sputtern)) oder Wechselströme (rf-Sputtern, 13,56MHz) gespeist werden. Letzteres ist bei der Deposition von Isolatoren erforderlich. Da die kinetische Energie der Ionen nur teilweise (10% - 25%) für die Auslösearbeit der Teilchen benötigt wird, kommt es zu einer erheblichen Erwärmung des Targets, so daß eine stete Wasserkühlung der Kathode unbedingt nötig ist.

Beim im Rahmen dieser Arbeit verwendeten Magnetronsputtern befindet sich am Target zusätzlich eine Magnetanordnung, die dafür sorgt, daß sich die Elektronen aufgrund der Lorentzkraft im Plasma auf schraubenförmigen Bahnen entlang der Magnetfeldlinien (s. Abb. 3.1) bewegen. Dieses führt wegen der dadurch erhöhten Elektronendichte zu einer größeren Ionisierungswahrscheinlichkeit im Plasma im Bereich des Magnetrontracks und somit zu einer höheren Zerstäubungsrate. Somit liegt trotz der vorliegenden sog. on-axis-Konfiguration (Target und Substratoberfläche parallel angeordnet) keine ‚direkte‘ Beschichtung des Substrates vor. D.h. alle sich am Substrat anlagernden Teilchen müssen im Gasraum zwischen Target und Substrat Streuprozesse mit dem Sputtergas durchlaufen, bei denen sie Energie abgeben. Diese quasi-off-

axis-Anordnung ist für die Abscheidung der hochkomplexen HTSL-Schichten im weiteren von großer Bedeutung.

Für das Sputtern von YBCO-Filmen ist es notwendig, neben dem Inertgas (hier: Argon) als reaktive Komponente das Sputtergas Sauerstoff einzusetzen, um zumindest die tetragonale Phase zu erhalten (s. Abb. 3.7). Der erforderliche Einsatz von gasförmigen Sauerstoff erzeugt jedoch zusätzliche präparative Probleme. Unter anderem bilden sich negative Sauerstoffionen unterschiedlichen Ionisierungsgrades, die in Richtung der Anode beschleunigt werden. Beim Auftreffen auf das Substrat können diese Ionen Teilchen aus der Schicht herausschlagen oder zur Defektbildung beitragen, was zur Degradation des Filmes führt. Freie Elektronen tragen dagegen kaum zum Rücksputtereffekt bei, da ihre kinetische Energie durch die häufigen Stöße aufgrund der Magnetronanordnung klein bleibt.

Eine Lösung bietet die sogenannte off-axis-Geometrie, bei der wegen der um 90° verdrehten Anordnung des Substrates zur Targetoberfläche (alternativ kann das Target um 90° gedreht, bzw. sog. Hohlzylinderkathoden verwendet werden) der Film nicht mehr direkt dem Ionenstrom ausgesetzt ist. Allerdings resultiert dies in einer niedrigeren Depositionsrate und einer kleineren homogen beschichteten Fläche. In der genutzten Anlage wurde dagegen neben der oben schon erwähnten quasi-off-axis-Anordnung (Magnetrontrackdurchmesser größer als Substratdurchmesser) der Ausweg eines höheren Prozeßgasdruckes, der zur sog. Thermalisierung führt, gewählt. Dabei verlieren die Sauerstoffionen aufgrund der größeren Anzahl von Stößen beim Durchqueren des Target-Substrat-Raumes einen Großteil ihrer Energie, so daß sie beim Auftreffen auf das Substrat keine Schäden mehr anrichten können.

Im Zuge der Optimierung der YBCO-Beschichtung wurde eine dritte reaktive Gaskomponente (Stickstoff) hinzugefügt, durch die sich dann Teilchenfluß (\propto Kathodenstrom) und Teilchenenergie (\propto Kathodenspannung) in einem weiten Parameterfenster unabhängig voneinander regeln lassen [Ock95c]. Dies führte zu einer entscheidenden Verbesserung der Reproduzierbarkeit der YBCO-Filmherstellung.

3.1.2 Beschreibung der Anlage

Die Filmherstellung erfolgte in einer der zwei NORDIKO-Sputteranlagen, die im Institut für die HTSL-Abscheidung weiterentwickelt wurden [Ock95a, Krü94]. Sie arbeitet nach dem ‚sputter-down‘-Prinzip, wobei 4 Kathoden für dc- und rf (13,56MHz)-Sputtern mit unterschiedlichen Targetmaterialien zur Verfügung stehen. Dies bietet die Möglichkeit zur in-situ Abscheidung von Multilagen [Ock95]. Die Substrate werden auf einem drehbaren Tisch unter die gerade benutzte Kathode gefahren, d.h. es liegt nominell eine on-axis-Konfiguration vor.

Die Substrate mit einer maximalen Größe von 4Zoll im Durchmesser werden durch ein resistives Heizsystem mittels Wärmestrahlung und Konvektion (s. Abb. 3.1) auf Depositionstemperatur erwärmt. Zur besseren Wärmeankopplung werden kleine Substrate der Größe $10 \times 10 \text{ mm}^2$ mit Leitsilber auf einen Inconel-Halter aufgeklebt, während große Substrate (≥ 1 Zoll im Durchmesser) auf ihrer Rückseite mit einer schwarzen Kupferoxidschicht versehen werden. Im Laufe der Arbeit wurde ein neuer Heizer entwickelt und eingesetzt, der mit einer ‚Hochdruckgastasche‘ zwischen dem eigentlichem Heizelement und dem Substrathalter ausgestattet ist (s. Abb. 3.1). Da in diesem Zwischenraum ein gegenüber dem Sputterdruck deutlich erhöhter Druck erzeugt werden kann, ist der Wärmeübertrag durch Konvektion viel effizienter. Dieser Effekt kann durch eine Verringerung des Abstandes Substrat-Heizelement auf die mittlere freie Weglänge der Gasteilchen verstärkt werden, da dann eine blockierte Strömung vorliegt und die Gasmoleküle bzw. -atome ihre durch die Aufheizung gewonnene Energie direkt ans Substrat abgeben können. Dies ermöglicht, bei gleicher Heizerleistung ohne Kupferoxidschicht zu arbeiten, so daß mit dem Auftragen und Entfernen des Kupfers 2 Prozeßschritte entfallen. Zudem können die Substrate in diesem Verfahren doppelseitig beschichtet werden, da der höhere Druck an der Substratunterseite eine Schädigung des bereits gesputterten YBCO-Films verhindert (s. Phasendiagramm in Abb. 3.7).

Die Kathoden bestehen aus einer Kupfermatrix, in die entweder ein Mosaik aus 6 kleinen Targets ($\varnothing \approx 45 \text{ mm}$) oder ein einzelnes Ringtarget ($\varnothing \approx 120 \text{ mm}$) eingelassen sind (Abb. 3.2). Die kleinen Targets sind einfacher herzustellen, während bei den großen Ringtargets ein gleichmäßigerer Abtrag erfolgt, was eine längere Lebensdauer zur Folge hat. Letzteres kann zusätzlich durch Erhöhung der Dichte des Targetmaterials erreicht werden.

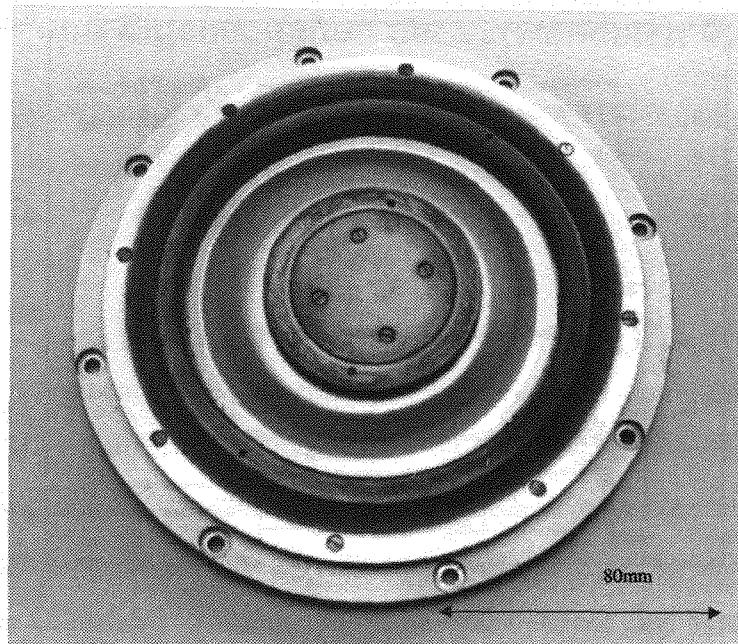


Abb. 3.2: Im Institut hergestelltes YBCO-Ringtarget nach einer Sputterzeit von ca. 120h.

Die gleichmäßige Erwärmung der Substrate über 4 Zoll und die gleichmäßige Plasmaverteilung aufgrund eines Trackdurchmessers von 80mm sind Voraussetzungen für eine homogene Filmabscheidung. Durch eine geeignete Parameterwahl, z.B. Abstand Target-Substrat, lassen sich somit extrem homogen Schichten deponieren.

Der genaue Prozeßablauf ist in [Ock95a] ausführlich beschrieben. Der zeitliche Ablauf der wichtigsten Parameter (Substrattemperatur, Druck, Kathodenleistung etc.) ist Abb. 3.3 zu entnehmen. Aus diesem Bild geht auch der für die anschließende Oxydation verwandte Nachbehandlungsprozeß hervor, bei dem die Phasenumwandlung des tetragonalen zum orthorhombischen YBCO stattfindet.

Alternativ wurden Referenzproben in der zweiten NORDIKO-Sputteranlage hergestellt, die grundsätzlich gleich aufgebaut ist, allerdings nach dem ‚sputter-up‘-Prinzip arbeitet.

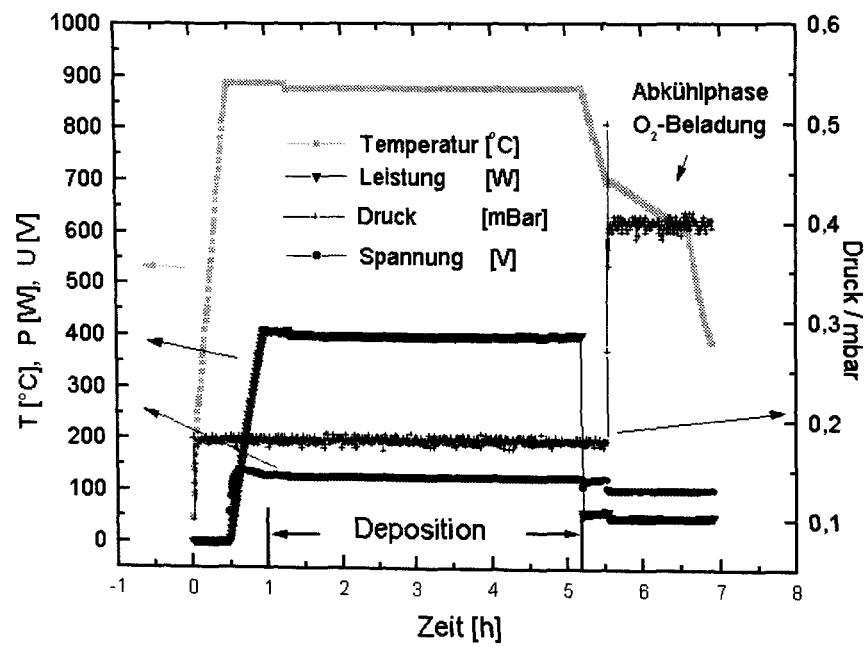


Abb. 3.3: Typischer zeitlicher Ablauf der wichtigsten Prozeßparameter, Kathodenleistung, Kathodenspannung, Heizertemperatur und Gesamtdruck.

3.1.3 Struktur und Eigenschaften der verwendeten Materialien

In diesem Abschnitt werden der Hochtemperatursupraleiter YBCO und geeignete Substrat- und Puffermaterialien vorgestellt.

3.1.3.1 Substrate

Für die Auswahl geeigneter Substrate müssen eine Reihe von Kriterien beachtet werden (vgl. Tab. 3.1). Der YBCO-Film soll c-Achsen-orientiert und möglichst einkristallin aufwachsen, da nur so stabile Schichten mit parallel zur Substratoberfläche hohen kritischen Stromdichten und definierten Korngrenzen an Stufen zu erwarten sind. Daher sollte das Substratmaterial eine möglichst geringe Gitterfehlانpassung an die a- und b-Achse des YBCO-Kristalles besitzen. Außerdem muß der thermische Ausdehnungskoeffizient des Substrates ähnlich dem des Supraleiters sein, da in einem Temperaturbereich von 4K (Messung) bis 850°C (Filmdeposition) gearbeitet wird. Sehr gut wird dieses durch SrTiO₃ (STO) ($a = 3.905\text{nm}$) erfüllt. Nachteile dieses Materials sind jedoch die im Falle von Anwendungen im Hochfrequenzbereich hohe Dielektrizitätskonstante ($\epsilon = 1800$ bei 77K) und insbesondere die hohen dielektrischen Verluste, die typischerweise durch einen $\tan \delta$ -Wert größer $\cdot 10^{-4}$ beschrieben werden. Weiterhin steht es nicht großflächig, z.B. als 2 Zoll Wafer, zur Verfügung. Eine Alternative bietet hier LaAlO₃ (LAO), das großflächig erhältlich ist und niedrige Hochfrequenzverluste sowie eine niedrige dielektrische Konstante aufweist. Allerdings können sich, wie später gezeigt werden wird, morphologische Veränderungen und Eigenarten dieses Substrattyps nachteilig auswirken. LaAlO₃ ist stark verzwillingt (einkristalline um ca. 90° gedrehte Bereiche von mm-Größe) und durchläuft bei ca. 500°C einen strukturellen Phasenübergang vom rhomboedrischen zum kubischen Zustand [O'Br90]. So kommt es beim thermischen Zyklus des Substrates während des Depositionsvorgangs zur Verschiebung der Zwillingsbereiche um bis zu mehrere μm , was eine mangelnde Maßhaltigkeit und hohe Oberflächenrauigkeit des Substrates zur Folge hat. Eine zwillingsfreie Modifikation des LaAlO₃ bildet das sog. LSAT, welches sich aus einer Kombination von LaAlO₃ und SrAlTaO₆ zu $(\text{LaAlO}_3)_{0,3}-(\text{SrAlTaO}_6)_{0,7}$ zusammensetzt. Allerdings kann dieses Material noch nicht reproduzierbar spannungsfrei hergestellt werden. Es ist zudem mit hohen dielektrischen Verlusten behaftet.

Material	r-cut Al_2O_3	CeO_2 auf r-cut Saphir	YSZ auf r-cut Saphir	LaAlO_3	SrTiO_3	LSAT*	$\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$
Struktur	hexagonal	kubisch	kubisch CaF_2	rhomboedr. Perov.	kub. Perovskit	kub. Perovskit	ortho- rhombsch
a, b, c [Å]	a=4,76, c=12,97	a=5,41	a=5,11- 5,22	a=5,36, c=13,1	a=3,91	a=3,87	a=3,82, b=3,89, c=11,68
ρ [g/cm ³]	3,99	7,13	5,9	6,57	5,12	k.A.	6,4
T_s [K]	2040	2600	2550	2100	2080	k.A.	≈1000
Phasen- übergang	-	-	-	kubisch	-	-	tetragonal
ϵ_G [%]	6-14	0,7	6	1-2	0,5-2	1-2	
α_{th} [10 ⁻⁶ /K]	9,4-11,6 anisotrop	9,9	11	10	9,4	k.A.	10-13[a,b]
ϵ	9,4	21,2 für CeO_2	27-33 für YSZ	25	300 1800 ^{@77K} 19000 ^{@4K}	23	
$\tan\delta$ (77K)	10 ⁻⁶ -10 ⁻⁸ @10GHz	k.A.	>6×10 ⁻⁶ für YSZ	10 ⁻⁵ @6,4GHz	3×10 ⁻⁴ @18GHz	2×10 ⁻⁴ @9GHz	

Tab. 3.1.: Materialeigenschaften bei Raumtemperatur [Hol94, Zuc96, Pie87]. Notation: a, b, c: Gitterkonstanten; ρ : spezifisches Gewicht; T_s : Schmelztemperatur; ϵ_G : Gitterfehlانpassung zu YBCO; α_{th} : thermische Ausdehnungskoeffizient; ϵ : Dielektrizitätskonstante; $\tan\delta$: Verlustwinkel; LSAT*: $(\text{LaAlO}_3)_{0,3} - (\text{SrAlTaO}_6)_{0,7}$; YSZ: Ytrium stabilisiertes Zirkonoxid.

Insbesondere für größere Abmessungen und Anwendungen im Hochfrequenzbereich bietet sich r-cut Saphir (ALO) an, ein technisches Substrat mit extrem guter Oberflächenpolitur, guten mechanischen und thermischen Eigenschaften, das zudem eine sehr gute Kristallinität besitzt und einem Semistandard entsprechend erhältlich ist. Allerdings ist vor der Abscheidung von YBCO das Aufbringen einer Pufferschicht, z.B. CeO_2 , nötig, um die Diffusion von Aluminium in den Supraleiter zu unterbinden und ein epitaktisches c-Achsen-orientiertes Wachstum von YBCO auf Saphir zu erreichen.

In Tab. 3.1 werden die wichtigsten Eigenschaften der in dieser Arbeit verwendeten Materialien vorgestellt. Es wurde vor allem mit LaAlO_3 (LAO) und r-cut Saphir gearbeitet. LAO wurde ausgewählt, da hier große Erfahrungen mit Stufenkontakten und deren Herstellung vorlagen, während Saphir als Material mit den insgesamt besten Eigenschaften (z.B. für Hochfrequenzanwendungen) ausgewählt wurde. Im folgenden soll auf die Eigenschaften und Eigenarten des hauptsächlich verwendeten Substratmaterials Saphir näher eingegangen werden.

Saphir

Die Kristallstruktur des Saphir (Al_2O_3) (griech.: Sappheirros) kann als hexagonale ($a = 4,76\text{\AA}$, $c = 12,97\text{\AA}$ ($= 6 \cdot 2,165\text{\AA}$ [Abstand der Al-Ebenen]) oder rhomboedrische ($a = 5,13\text{\AA}$, $\alpha = 55,20^\circ$) Struktur beschrieben werden (Abb. 3.4a, b).

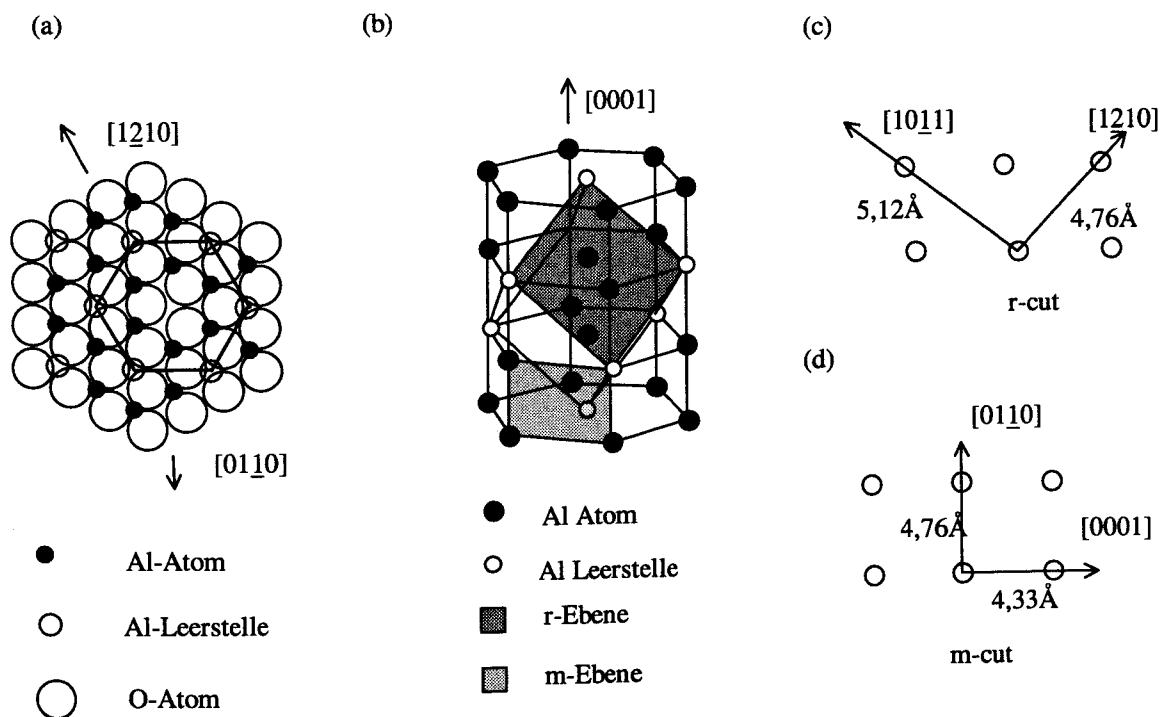


Abb. 3.4: Kristallstruktur des Saphir: (a) Schematische Projektion der Atompositionen in die (0001) -Ebene, (b) Schematische Darstellung der hexagonalen und rhomboedrischen Einheitszelle mit grau unterlegter r- und m-Ebene, (c), (d) Oberflächenstruktur des r- und m-cut-Saphirs (nach [Hol94]).

Für epitaktisches Abscheiden von Filmen mit kubischer Struktur oder quasi-quadratischer Grundfläche bietet sich der r- oder m-cut des Saphirkristalls an, wobei der r-cut auch häufig für

SOS (Silicon on Sapphire) genutzt wird. Dabei ist die r -Ebene eine Facette der rhomboedrischen Gitterzelle mit einem Winkel zur Hauptachse $[0001]$ von $32,4^\circ$ (Abb. 3.4b). Die $(1\bar{1}02)$ -Ebene bildet die Oberfläche des r -cut-Saphirs mit quasi-quadratischer Struktur ($85,7^\circ$) (Abb. 3.4c). Die beiden Hauptachsen $[10\bar{1}1]$ ($a = 5,12\text{\AA}$) und $[1\bar{2}10]$ ($a = 4,76\text{\AA}$) besitzen zu (001) -YBCO eine Gitterfehlانpassung von $\epsilon_G = 6\%$ bzw. 14% . Die m -cut Oberfläche ist durch die seitliche Facette der hexagonalen Saphirgitterzelle definiert (Abb. 3.4b), d.h. die $(10\bar{1}0)$ -Ebene bildet die Oberfläche mit rechtwinkliger Struktur (Abb. 3.4d). Aus den Gitterparametern von $4,33\text{\AA}$ ($[0001]$ -Richtung) und $4,76\text{\AA}$ ($[01\bar{1}0]$ -Richtung) ergibt sich für m -cut-Saphir eine noch größere Gitterfehlانpassung von $\epsilon_G = 18\%$ zum YBCO. Wegen der kleineren Gitterfehlانpassung wurde in dieser Arbeit r -cut Saphir verwendet.

3.1.3.2 $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$

Das hier verwendete supraleitende Material, $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ (Yttrium-Barium-Kupferoxid) mit einer Übergangstemperatur bis zu 95K [Fal93], ist mit seiner Ähnlichkeit zum Perovskit (ABO_3) ein typischer Vertreter der neuen Hochtemperatursupraleiter, die eine supraleitende Sprungtemperatur T_c höher als die Siedetemperatur von Stickstoff ($77,4\text{K}$) besitzen. Seine Schichtstruktur ($\text{Y-CuO}_2\text{-BaO-CuO}_{1-\delta}\text{-BaO-CuO}_2$) ist in Abb. 3.5 deutlich zu erkennen.

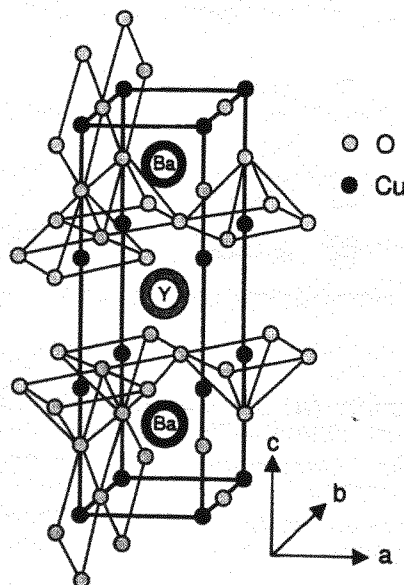


Abb. 3.5: Kristallstruktur des $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$ (nach [Buc91]).

Diese strukturelle Anisotropie führt zu einer starken Anisotropie der elektromagnetischen und supraleitenden Eigenschaften. So ist z.B. die Kohärenzlänge ξ in c-Richtung mit 0,2 – 0,4 nm um den Faktor 5-7 kleiner als in a- bzw. b-Richtung [Kap88]. Aus der Tatsache, daß Yttrium und Barium durch andere Elemente ersetzt werden können, aber die CuO_2 - und die Metall (Cu)-Oxid-Ebenen (Basalebene) charakteristisch sind für die meisten HTSL, wird ersichtlich, daß diese beiden Ebenen für die Supraleitung entscheidend sind. Dabei findet in der CuO_2 -Ebene aufgrund der Kondensation der Cooperpaare die eigentliche Supraleitung statt. Die elektrische Leitfähigkeit ist durch den Überlapp der Elektronenorbitale gegeben.

In der CuO-Ebene bilden sich Ketten entlang der b-Achse, die über die Sauerstoffatome in den Bariumebenen mit den CuO_2 -Ebenen verbunden sind. Die Bedeutung der Ketten besteht in der Versorgung der Ebenen mit Ladungsträgern. Hierbei spielt der Sauerstoff eine zentrale Rolle. Der Sauerstoffgehalt kann in der sog. 1-2-3-Phase des $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ (1-2-3 bezieht sich auf die Stöchiometrie dieser Klasse von oxydischen Supraleitern) zwischen $0 < \delta < 1$ variieren. Dabei ändert sich lediglich der Sauerstoffgehalt der CuO-Ketten. Sind die Gitterplätze voll besetzt, so liegt die supraleitende $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$ -Phase in der orthorhombischen Struktur mit den Gitterkonstanten $a = 3,82\text{\AA}$, $b = 3,89\text{\AA}$ und $c = 11,68\text{\AA}$ vor. Nimmt der Sauerstoffgehalt ab, verschwindet der Sauerstoff aus den Ketten, bis schließlich das halbleitende $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_6$ in der tetragonalen Struktur entsteht, bei dem der Sauerstoff in den CuO-Ketten vollständig fehlt. Der Einfluß des Sauerstoffgehaltes auf die supraleitenden Eigenschaften wird aus Abb. 3.6 deutlich.

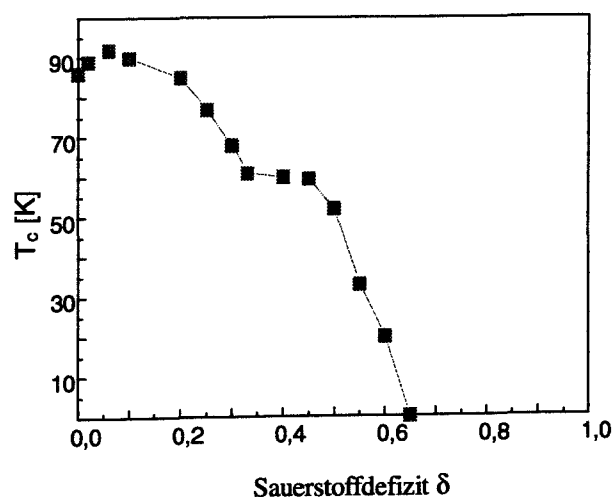


Abb. 3.6: Einfluß des Sauerstoffgehaltes von $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ auf T_c ([Jor90, Che95]).

Die Ursache hierfür liegt in der Modulation der Ladungsträgerkonzentration bei Variation des Sauerstoffanteils (charge transfer model) [Cav90a]. Beim Einbau von Sauerstoff in die Basalebene werden aus Gründen des Ladungsgleichgewichtes aus den CuO_2 -Ebenen Elektronen abgezogen, und damit Ladungsträger (Löcher) hinzugefügt. Die maximale Übergangstemperatur $T_c = 95 \text{ K}$ wird durch Ausbildung eines Übergitters [Fal93] bei $\delta = 0,06$ erreicht. Zu hoher Sauerstoffanteil führt normalerweise zu einer leichten Reduktion von T_c [Jor90, Che95], allerdings auch zu optimalen kritischen Eigenschaften und Hochfrequenzeigenschaften. Daher wurde im Rahmen dieser Arbeit üblicherweise keine Sauerstoffreduktion durchgeführt.

3.1.4 Deposition

3.1.4.1 Deposition des $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$

Grundvoraussetzung für die Herstellung von supraleitenden YBCO-Filmen ist die Wahl der für die Präparation entscheidenden Parameter, Temperatur und Sauerstoffpartialdruck. Die hierfür üblichen und möglichen Bereiche sind im Phasendiagramm (Abb. 3.7) für die unterschiedlichen Depositionsverfahren angegeben.

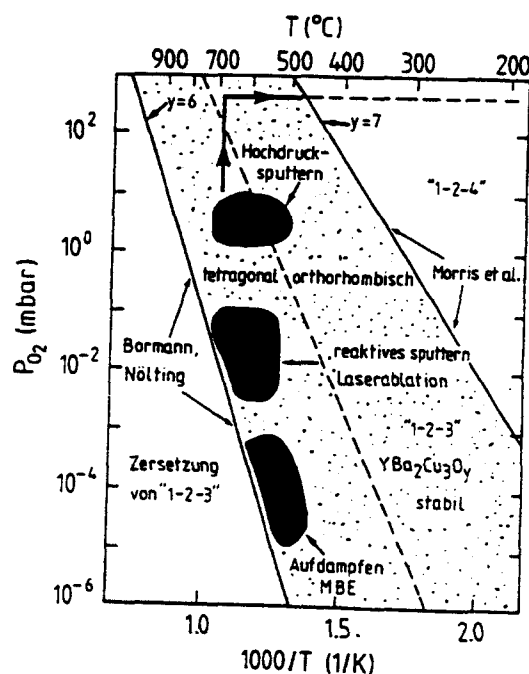


Abb. 3.7: Erweitertes p - T Phasendiagramm von YBCO [Fee91].

Das Phasendiagramm verdeutlicht, daß der Sauerstoffgehalt des $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ -Filmes keinesfalls unter $\delta = 1$ fallen darf, da sonst die 1-2-3-Phase zerstört wird. Allerdings wird die Schicht üblicherweise nicht in der supraleitenden Phase abgeschieden, sondern nach der Deposition durch einen geeigneten Prozeßverlauf von der nicht-supraleitenden tetragonalen in die orthorhombische Phase überführt. Dies ermöglicht eine höhere Prozeßtemperatur bei gleichbleibendem Druck, so daß die auf das Substrat auftreffenden Teilchen sich aufgrund ihrer hohen Beweglichkeit noch umordnen können, und der Film epitaktisch aufwachsen kann. Der verwandte Sputterdepositionsprozeß sieht nun üblicherweise so aus, daß der YBCO-Film in der tetragonalen Phase mit den in Tab. 3.2 angegebenen Parametern abgeschieden wird. Danach findet eine in-situ Sauerstoffbeladung statt, bei der die vakanten Sauerstoffstellen in den CuO-Ketten besetzt und so die supraleitende orthorhombische Phase gebildet wird. Dabei wird der YBCO-Film bei niedrigem Druck (450mTorr) in Sauerstoff abgekühlt, und der Sauerstoff mittels eines Plasmas aktiviert [Ock95b].

Target	$\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$	CeO_2	YSZ	SrTiO_3
Modus	dc	rf	rf	rf
Substrat	$\text{CeO}_2\text{-Al}_2\text{O}_3$ oder LaAlO_3	Al_2O_3	Al_2O_3	Al_2O_3
Prozeßgas Ar/ O_2 / N_2 [sccm]	60/25/2	100/15	100/15	100/15
Gasdruck [mTorr]	450	100	100	30
Leistung [W]	300	130	130	130
Spannung [V]	180	0-20	0-20	0-20
Abstand: Target-Substrat [cm]	8	5	5	5
Heiztischtemperatur [°C]	840 für Saphir 880 für LaAlO_3	800-880	840	840
Wachstumsrate [nm/min]	1,2	0,5	0,5	1,1
Nachbehandlung	Abkühlen im O_2 -Plasma bei Sputterdruck [Ock95b]	Abkühlen bei Sputterdruck	Abkühlen bei Sputterdruck	Abkühlen bei Sputterdruck

Tab. 3.2: Typische Depositionsparameter der Sputterprozesse.

3.1.4.2 Deposition der Pufferschichten

CeO_2 , YSZ und SrTiO_3 wurden als Puffermaterial zwischen Saphir und YBCO eingesetzt, um Interdiffusion von Aluminium des Saphirs in den Supraleiter zu unterbinden, und ein epitaktisches Wachstum von YBCO mit guten strukturellen und supraleitenden Eigenschaften auf Saphir zu erreichen. Weiterhin stellen diese Oxide Kandidaten für das Stufenmaterial dar. Um diesen Ansprüchen zu genügen, wurde bei der Deposition von ausreichend dicken Filmen das Erreichen guter struktureller Eigenschaften angestrebt, d.h. hohe Kristallinität und keine störenden Defekte wie z.B. Risse. In Tab. 3.2 sind die optimierten Depositionsparameter aufgeführt, die zur Deposition der YBCO- und Pufferfilme verwandt wurden.

3.1.5 Kristallines Filmwachstum

3.1.5.1 Kristallwachstum

Kristallwachstum auf Oberflächen wird im Allgemeinen durch drei klassische Wachstumsmoden beschrieben.

- (a) Beim Frank-van-der-Merve-, Schicht- oder 2D-Inselwachstum (Abb. 3.8a) sind die deponierten Teilchen stärker ans Substrat oder die schon gewachsene Lage gebunden als an die benachbarten Teilchen. Das heißt, die Bindungsenergie jeder Lage nimmt monoton ab. Deshalb bilden sich nacheinander komplette Monolagen aus.
- (b) Beim Volmer-Weber- oder (3D)-Inselwachstum (Abb. 3.8b) ist die Wechselwirkung der Teilchen untereinander größer als zum Substrat, so daß sich Inseln auf dem Substrat formen, die dann zusammenwachsen.
- (c) Das Stranski-Krastanov-Wachstum (Abb. 3.8c) ist eine Kombination aus beidem. Zuerst wachsen einige Monolagen auf dem Substrat, sobald die Bindung zwischen den Teilchen größer ist als zur darunterliegenden Schicht, bilden sich Inseln.

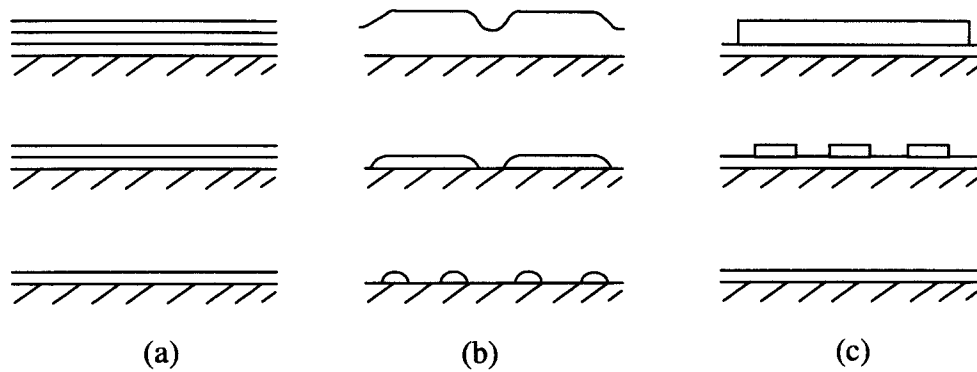


Abb. 3.8: Die unterschiedlichen Wachstumsmoden: (a) Schichtwachstum, (b) Inselwachstum, (c) Stranski-Krastanov-Wachstum [Sto75].

Das Wachstum von YBCO ist nicht eindeutig einer der drei Klassen zuzuordnen. Es ist u.a. abhängig vom Substratmaterial (Gitterkonstante), von der Oberflächenmorphologie (atomare Stufen) und von den Depositionsbedingungen (Depositionstemperatur). So wurde u.a. Volmer-Weber-Wachstum [Pen92] und Spiralwachstum [Ger91], eine spezielle Form des Inselwachstums, für die YBCO-Deposition beobachtet. Bei vizinalen, d.h. verschnittenen, Substraten kann ‚Step-Flow‘- oder (2D)-Inselwachstum auftreten (Abb. 3.9). ‚Step-Flow‘-Wachstum liegt vor, wenn sich die Adatome an die atomaren Stufen anlagern und sich die Stufenkanten über die Terrassen ausbreiten. Dies ist der Fall, wenn die laterale Migrationslänge λ_m der Teilchen auf der Oberfläche größer ist als die Terrassenlänge l . Der Übergang von Insel- zu ‚Step-Flow‘-Wachstum findet statt, wenn beim Depositionsprozess die Migrationslänge der Teilchen der Terrassenlänge zwischen den Stufen entspricht (Abb. 3.9) [Pen92]. Die Migrationslänge λ_m wird durch die Oberflächendiffusionskonstante D_s und die mittlere Verweildauer τ_d der Teilchen auf der Oberfläche durch

$$\lambda_m = (D_s \tau_d)^{1/2} \quad (3.1)$$

bestimmt. Die Werte für YBCO liegen typischerweise bei $\lambda_m = 10 - 40\text{nm}$ für PVD-Abscheidungsverfahren. Auf planaren Trägern z.B. SrTiO_3 -Substraten mit einem üblichen Verschnitt von $\leq 0,6^\circ$ und einer Terrassenhöhe von einer Einheitszelle liegt die Terrassenlänge bei $l \leq 40\text{nm}$. Deshalb ist bei nicht zu stark verschnittenen Substraten (2D)-Inselwachstum zu

erwarten. Im Falle der Stufenkontakte ist an den steilen Stufen ($\alpha > 20^\circ$) die Terrassenlänge minimal-. Daher wird wegen $\lambda_m \gg 1$ hier ‚Step-Flow‘-Wachstum erwartet.

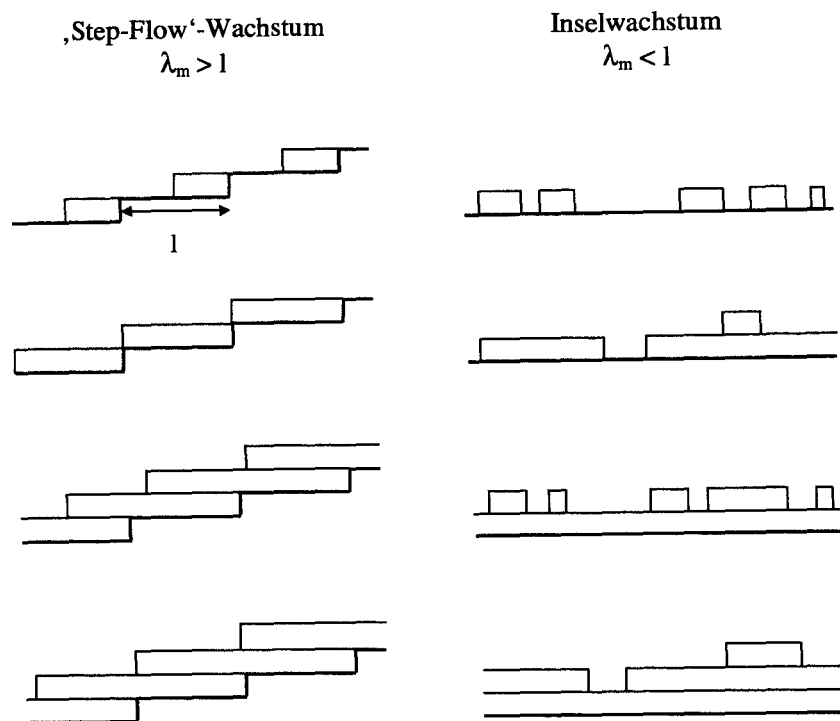


Abb. 3.9: Schematische Darstellung des Übergangs zwischen Inselwachstum und ‚Step-Flow‘-Wachstum [Pen92].

3.1.5.2 Epitaxie

Mit dem Begriff *Epitaxie* wird in der Schichtdeposition einkristallines Wachstum einer Schicht auf einer einkristallinen Oberfläche (Substrat oder eine andere Schicht) mit fester kristalliner Beziehung zwischen Schicht und Oberfläche bezeichnet. Bei der Deposition entstehen bevorzugt Keime mit der kleinsten Gitterfehlpassung, d.h. mit minimierter Verspannungsenergie. Während der Deposition ist das System aufgrund der ständig neu eintreffenden Teilchen nicht im thermodynamischen Gleichgewicht. Ist die Beweglichkeit der Atome (Migration) auf der Oberfläche hinreichend groß, so haben die Teilchen ausreichend Zeit, den thermodynamisch günstigsten Gitterplatz einzunehmen. Die Migrationslänge wird hauptsächlich durch die chemischen Potentiale bestimmt und kann durch die Temperatur beeinflusst werden. Für

kristallines Wachstum ist daher meist eine bestimmte Mindesttemperatur nötig. Neben der strukturellen Übereinstimmung der beiden Kristalle (physikalische Epitaxie), müssen auch die Ladungsverhältnisse der beiden Grenzflächen berücksichtigt werden (chemische Epitaxie). So kann z.B. bei LaAlO_3 die Grenzfläche der abschließenden LaAlO_3 -Zelle einfach positiv oder einfach negativ geladen sein [Mar92].

Ähnlich wie bei der Unterscheidung der Wachstumsmoden kann nun im Wesentlichen zwischen drei unterschiedlichen Epitaxieklassen für einkristallines Wachstum differenziert werden. Alle drei sind im Verlauf der Arbeit für das Verständnis und die Interpretation des Wachstums von YBCO und Puffermaterial an unterschiedlichen Stufen wichtig.

Homoepitaxie bedeutet das kristalline Wachstum identischer Materialien aufeinander, sie liegt z.B. während der Deposition einer Schicht vor.

Heteroepitaxie bezeichnet das kristalline Wachstum unterschiedlicher Materialien aufeinander. Diese liegt z.B. bei der Abscheidung von HTSL-Filmen auf strukturell gut angepaßten Substraten vor. Bei Systemen von mehreren Schichten werden normalerweise nur unterschiedliche Materialien aufeinander abgeschieden, da üblicherweise die einzelnen Schichten unterschiedliche Funktionen besitzen. Es kann aber durchaus von Interesse sein, zur Verbesserung der Schichtqualität gleiche Materialien kristallin aufeinander abzuscheiden. So bietet es sich an, bei Stufenkontakten die Stufe mit einem dünnen Film aus dem Stufenmaterial abzudecken, um den entscheidenden YBCO-Film auf einer in-situ hergestellten und unbehandelten Oberfläche zu deponieren.

Graphoepitaxie schließlich definiert eine andere Epitaxieart, bei der aufgrund der großen Gitterfehlanpassung die Morphologie der Oberfläche und nicht die Kristallstruktur des unteren Materials die Orientierung und Kristallinität des abzuscheidenden Filmes bestimmt. Ein Beispiel hierfür ist die Deposition von YBCO-Filmen auf vizinalem MgO. Hierbei ist die Oberfläche des Substrates leicht gegen die Hauptachse verkippt, so daß die Morphologie der Oberfläche durch Mikrostufen geprägt ist, an denen sich YBCO einkristallin anlagern kann [Str90, Nor92]. Graphoepitaxie ist für diese Arbeit insofern interessant, da insbesondere das Wachstum an Stufen nach diesem Mechanismus vonstatten gehen kann. Dabei ist es von Bedeutung, inwieweit die atomaren Stufen, aus denen sich die Gesamtstufe zusammensetzt, das Wachstum der darauf abgeschiedenen Schichten beeinflussen.

3.1.5.3 Rißbildung

Im Falle großer Gitterfehlpassung, z.B. zwischen CeO_2 bzw. YBCO und Saphir entstehen beim heteroepitaktischen Wachstum große elastische Spannungen im Film. Diese Spannungen können zu mechanischen Durchbiegungen des Substrates, aber auch zu Defekten bis hin zu Rissen in der Schicht führen. In den bis zu 300nm dicken CeO_2 -Schichten und bis zu 500nm dicken CeO_2 /YBCO-Schichtpaketen konnte sowohl eine Verkipfung des Filmes, das zu Säulenwachstum führte (s. Kap. 3.1.6.2), als auch Risse beobachtet werden. Probleme, wie die Rißbildung, sind z.B. von GaAs-Systemen bekannt und werden durch die allgemeine Theorien für heteroepitaktisches Wachstum beschrieben [Fit91]. Im Folgenden soll die kritische Schichtdicke für Risse in YBCO und CeO_2 abgeschätzt werden (s. auch Ref. [Zai97b]).

Die ersten Lagen eines Films wachsen perfekt an das Substrat angepaßt, aber wegen der Gitterfehlpassung verspannt auf. Sobald eine kritische Filmdicke erreicht ist, ist die in dem Film gespeicherte elastische Energie ausreichend für die Bildung von Defekten (Punktdefekte, Versetzungen bis hin zu Rissen). Für die elastische Verspannung ϵ gilt im einfachsten Fall

$$\epsilon = \epsilon_G - \delta = \frac{a_s - a_f}{a_s} - \delta, \quad (3.2)$$

wobei der erste Teil die Gitterfehlpassung ϵ_G zwischen Substrat mit dem Gitterparameter a_s und dem Film mit dem Gitterparameter a_f darstellt, und δ die Dichte und Art der Gitterdefekte in der Schicht repräsentiert [Fit91]. Die Brechungstheorie von Festkörpern liefert für die Energie, die pro Einheitslänge eines zweidimensionalen Risses frei wird [Cot75]:

$$E_c = \pi Y \epsilon^2 (a/2)^2, \quad (3.3)$$

wobei a die Höhe des Risses ist, und $a = t$, wenn der Riß normal zur Filmoberfläche über die gesamte Filmdicke t verläuft. Y , das Young-Modul des Filmmaterials, ist für (001)-YBCO-Filme $Y \approx 300\text{GPa}$ [Fit91, Bel91]. Für CeO_2 ist ein ähnlicher Wert zu erwarten. Die Bildung von Rissen ist nun energetisch vorteilhaft, wenn E_c die Energie E_s pro Einheitsrißlänge, die zur Bildung neuer Oberflächen gebraucht wird, übersteigt. Entsprechend Gl. (3.3) gilt $E_c \propto t^2$, wogegen E_s linear mit t wächst, $E_s = E_s^* \cdot t$.

Daraus ergibt sich eine kritische Filmdicke, ab der die Bildung von Rissen im Film vorteilhaft wird:

$$t_c = \frac{4E_s^*}{\pi Y \epsilon^2}. \quad (3.4)$$

Die Oberflächenenergie der Risse kann durch die Summe der Bindungsenergien aller Atome auf diesen Oberflächen abgeschätzt werden. Da die Daten für die Bindungsenergien der unterschiedlichen Atome des YBCO nicht bekannt sind, werden die Bindungsenergien aller Atome des YBCO entsprechend der Bindungsenergien von Oxiden zu $\bar{E}_b = 15\text{eV}$ abgeschätzt. Der Fehler, der dabei gemacht wird, liegt unter 30%. Für Risse entlang der a- bzw. b-Achse von (001)-YBCO sowie (001)-CeO₂ ergibt sich $E_s^* \approx 165\text{J/m}^2$, wenn der Riß identische Oberflächen besitzt. Diesen Wert in Gl.(3.2)–(3.4) eingesetzt, liefert die kritische Filmdicke als Funktion der Gitterfehlpassung für verschiedene δ , die in Abb. 3.10a für YBCO wiedergegeben ist. CeO₂ besitzt aufgrund seiner zu YBCO vergleichbaren Gitterparameter ähnliche kritische Schichtdicken. Abb. 3.10b gibt für das Wachstum von (001)-CeO₂ auf r-cut-Saphir die Abhängigkeit der kritischen Schichtdicke t_c vom Defektparameter δ für die beiden Grenzwerte der Gitterfehlpassung $\epsilon_G = 0,06$ bzw. $0,14$ (s. Abb. 3.15) wieder. Es zeigt sich in Abb. 3.10, daß jede Abweichung des Filmgitters vom Substratgitter aufgrund von Defektbildung an der Grenzschicht in eine Zunahme von δ , und damit in einen Zuwachs von t_c resultiert. Dieses läßt zwei wichtige Schlüsse zu: (i) Die tatsächlichen Werte von t_c liegen oberhalb der Kurve für $\delta = 0$. (ii) Die kritische Filmdicke für die Rißbildung kann durch den Einbau von strukturellen Fehlern erhöht werden. So konnte die kritische Filmdicke von YBCO auf Saphir durch das Erzeugen von Defekten von $t_c = 250\text{-}300\text{nm}$ auf $t_c = 700\text{nm}$ vergrößert werden [Zai97a] und im Rahmen dieser Arbeit konnten 300nm dicke CeO₂-Schichten und 500nm dicke CeO₂/YBCO-Schichtpakete rißfrei abgeschieden werden.

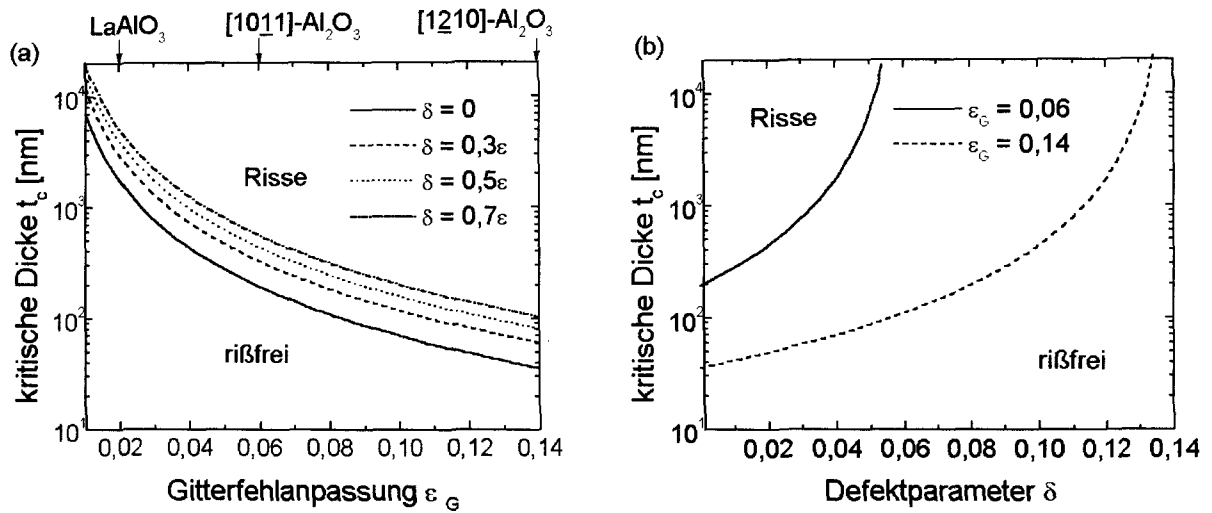


Abb. 3.10: (a) Kritische Filmdicke t_c berechnet für (001)-YBCO-Filme als Funktion der Gitterfehlanpassung für unterschiedliche Defektparameter δ . Die Fehlanpassung zu Saphir ist nicht eindeutig definierbar, da die Gitterparameter für r-cut-Saphir durch die Achsen $[10\bar{1}1]$ (6%) und $[1\bar{2}10]$ (14%) gegeben sind. Die Gitterfehlanpassung ist jeweils für Raumtemperatur berechnet. (b) Kritische Schichtdicke t_c für das Wachstum von (001)- CeO_2 auf r-cut-Saphir in Abhängigkeit vom Parameter δ , der die Dichte und Art der Defekte charakterisiert. Für die Gitterfehlanpassung sind die beiden Grenzwerte $\varepsilon_G = 6\%$ und 14% gewählt. Hierbei gilt $\varepsilon = \varepsilon_G - \delta$ (s. Gl. 3.2).

3.1.6 Charakterisierung der Filme

Die gesputterten Schichten wurden zuerst anhand ihrer strukturellen Eigenschaften und Oberflächenmorphologie charakterisiert. Für die Bestimmung der Epitaxie und der Kristallinität stand ein Röntgendiffraktometer zur Verfügung. Die Oberflächenbeschaffenheit wurde mit Hilfe der Rasterelektronenmikroskopie (REM), Rasterkraftmikroskopie (AFM) und Lichtmikroskopie (LM) untersucht. Als erste supraleitende Eigenschaft der YBCO-Filme wurde die supraleitende Übergangstemperatur induktiv gemessen.

3.1.6.1 Charakterisierung der YBCO-Filme

Röntgendiffraktometrie

Die Kristallinität wurde mit Hilfe der Röntgendiffraktometrie analysiert. Der schematische Aufbau des verwandten Goniometers ist in Abb. 3.11 gezeigt.

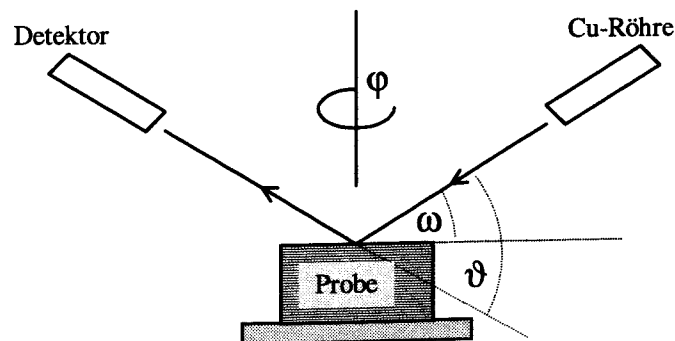


Abb. 3.11: Schematischer Aufbau eines Röntgendiffraktometers.

Es wurden einerseits Messungen in Bragg-Brentano-Geometrie aufgenommen, bei denen üblicherweise ein Winkelbereich von $15^\circ - 70^\circ$ auf Beugungsreflexe untersucht wird, die dann entsprechend der Bragg-Bedingung

$$n\lambda = 2d \sin(\vartheta/2) \quad (5)$$

Auskünfte über Kristallstruktur und Kristallausrichtung ermöglichen. Hierbei ist λ die Wellenlänge der emittierten Strahlung, d der Abstand der Netzebenen und ϑ der Winkel

zwischen einfallendem und reflektiertem Strahl. Man erhält so Aussagen über die Epitaxie und den Abstand der einzelnen Netzebenen senkrecht zum Substrat. So läßt sich z.B. ablesen, ob neben der gewünschten c-Achsen-Orientierung der Schicht andere, z.B. a-Achsen-Orientierung, vorliegen oder Fremdphasen eingebaut sind. Da die c-Achsenlänge wie auch die a- und b-Achsenlänge merklich mit dem Sauerstoffgehalt des Filmes variiert (Abb. 3.12), kann aus den Winkeln der c-Achsen-Reflexe (00l) der Sauerstoffgehalt bestimmt werden.

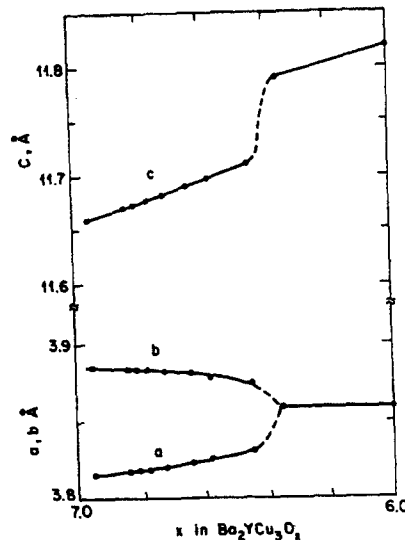


Abb. 3.12: Variation der Länge der a-, b- und c-Achse von $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_x$ mit dem Sauerstoffgehalt [Cav90b].

Des Weiteren wurden sog. Rockingkurven zur Bestimmung der kristallinen Qualität aufgenommen. Bei der Aufnahme dieser Kurven ist die Position des Detektors zum Substrat auf den zu untersuchenden Reflex des Filmes fixiert, der einfallende Strahl bewegt sich ('rockt') um den dazu gehörenden Winkel $\omega = \vartheta/2$, bei dem im Falle von perfektem einkristallinem Wachstum normal zur Oberfläche der maximale Reflex zu erwarten ist. Bei einem perfekten Kristall dürfte dann nur die apparative Verbreiterung (bei der benutzten Apparatur ca. 0.04° bei $\vartheta = 38^\circ$) detektiert werden, da nur für den exakten Winkel $2\omega = \vartheta$ die Bragg-Bedingung erfüllt ist. Dagegen verbreitert sich bei Filmen schlechterer kristalliner Orientierung (z.B. mosaische Verteilung) oder Qualität die aufgenommene Kurve. D.h. die Halbwertsbreite der experimentell bestimmten Kurve charakterisiert die Güte der Kristallinität. Abb. 3.13 zeigt einen Vergleich von Rockingkurven des (005)-Peaks für typische YBCO-Schichten auf Saphir (Halbwertsbreite $\Delta\omega = 0,69^\circ$) und SrTiO_3 ($\Delta\omega = 0,15^\circ$). Die im Vergleich zu Standardsubstraten für YBCO auf Saphir verbreiterte Rockingkurve rührt von der Gitterfehlانpassung zwischen Saphir und Puffer

her, die eine Verschlechterung der Kristallinität des CeO_2 nach sich zieht (s.u.). Dies hat aber nur bedingt Auswirkungen auf die supraleitenden Eigenschaften, da sie mehr durch die Korngrenzen als die Körner an sich beeinflusst werden. Es konnte im Gegenteil gezeigt werden, daß durch den gezielten Einbau von Defekten in YBCO die kritische Dicke der Filme erhöht (s. Kap. 4.1.3.3) und die supraleitenden Eigenschaften verbessert werden [Zai97a].

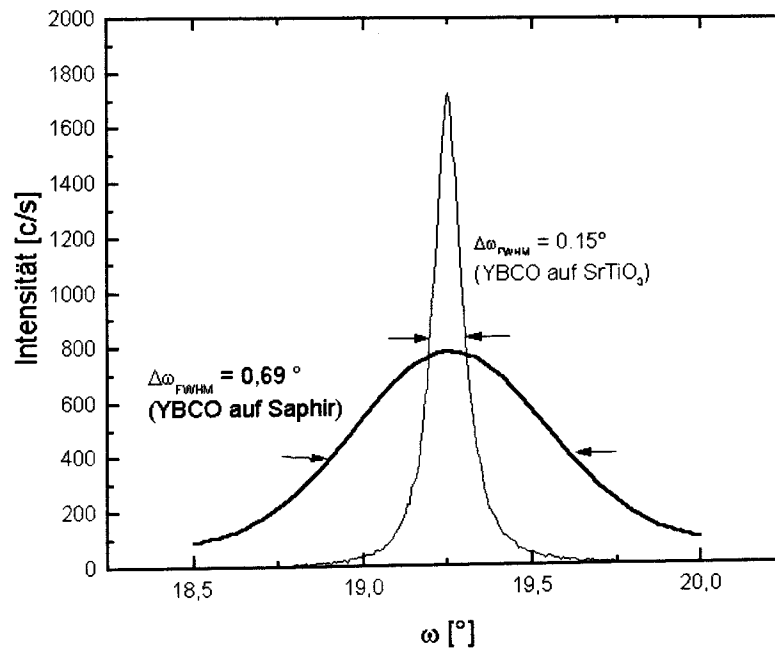


Abb. 3.13: Rockingkurve für den (005)-Reflex eines YBCO-Filmes auf Saphir im Vergleich mit der Rockingkurve eines YBCO-Filmes auf SrTiO_3 .

Oberflächenmorphologie

Weitere wichtige Kriterien für die Eignung eines Filmes für Stufenkontakte sind eine geringe Oberflächenrauigkeit und Ausscheidungsichte. Beides wird von Filmen, die mittels Kathodenzerstäubung hergestellt wurden, hervorragend erfüllt. Die Charakterisierung der Oberflächenrauigkeit wurde mittels Rasterelektronen- bzw. Rasterkraftmikroskopie vorgenommen. Ausscheidungen können mittels optischer Mikroskopie bewertet werden. Dabei wurde entsprechend der bestehenden Erfahrungen [Sch95] auf extrem gute T_c -Werte verzichtet. So konnten typische Rauigkeiten von $r_{\text{peak-to-peak}} \leq 15\text{nm}$ und Ausscheidungsichten von wenigen Defekten pro mm^2 erreicht werden, was für die Kontaktentwicklung ausreichend ist.

T_c -Messung

Als erster Test der frischdeponierten Filme hinsichtlich ihrer supraleitenden Eigenschaften dient eine automatisierte induktive Messung der Sprungtemperatur T_c , die aufgrund der kontaktlosen Meßmethode Vorteile gegenüber der resistiven Charakterisierung besitzt. Abb. 3.14 zeigt einen typischen Kurvenverlauf für eine Schicht über eine Stufe. Es ist ein abrupter Übergang zwischen der normalleitenden und der supraleitenden Phase zu erkennen. Die Kurve besitzt im unteren Signalbereich einen Fuß, der von der stark unterdrückten kritischen Stromdichte an der Stufe herrührt.

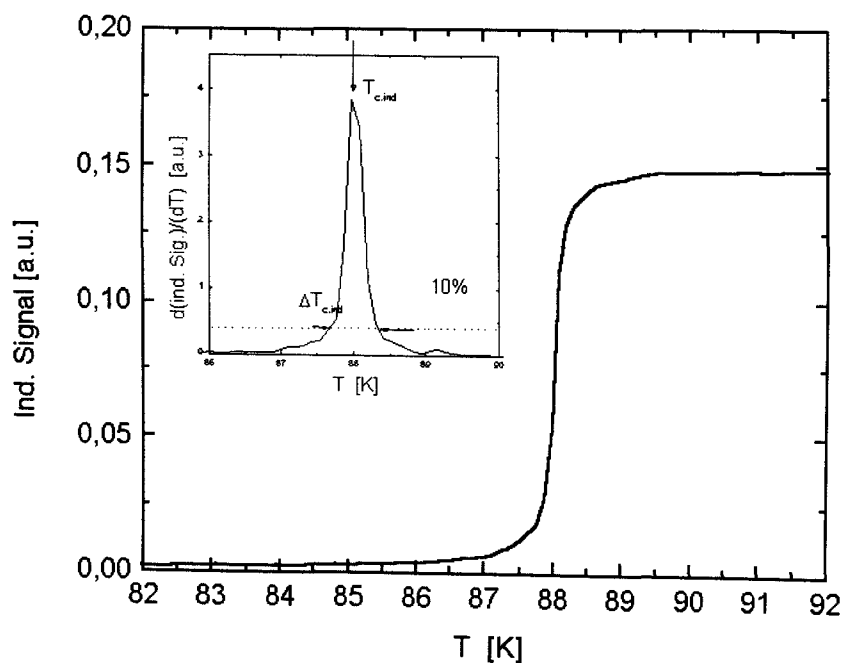


Abb. 3.14: Induktive Messung der Sprungtemperatur eines Filmes mit Stufe. Das Inset zeigt die Ableitung der Meßkurve, die zur eindeutigen Bestimmung von $T_c \approx 88\text{K}$ und $\Delta T_c \approx 0,5\text{K}$ dient, dabei wird T_c dem Maximum gleichgesetzt und ΔT_c dem Abstand der 10 % Werte des Maximums.

3.1.6.2 Charakterisierung der Puffer- und Isolatorschichten

Saphir besitzt als Substratmaterial einige herausragende Eigenschaften (s. Abschn. 3.1.3.1). Allerdings besitzen YBCO-Filme, die direkt auf Saphir abgeschieden werden, im Vergleich zu YBCO-Filmen auf Standardsubstraten schlechtere strukturelle und supraleitende Eigenschaften. Als Ausweg bieten sich Pufferschichten an, die zum einen die Diffusion von Aluminium ins YBCO unterbinden und zum anderen die große Gitterfehlانpassung zwischen Saphir und YBCO ausgleichen. Für die Wahl eines Puffers für r-cut-Saphir bieten sich zwei verschiedene Ansätze an. Der eine besteht darin, ein Material zu verwenden, das dem YBCO in seinen chemischen und strukturellen Eigenschaften sehr ähnlich ist, wie z.B. das $\text{PrBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$ (PBCO). Dies verhindert die Diffusion von Al ins YBCO und ermöglicht epitaktisches Wachstum des YBCO. Dadurch verbessern sich die schlechteren strukturellen und supraleitenden Eigenschaften des YBCO, allerdings reichen sie noch nicht an die Güte von YBCO-Filmen auf Standardsubstraten heran [Ham93]. Der andere Ansatz besteht im Einsatz von Oxiden mit kubischer Struktur, deren Gitterkonstanten der Diagonalen von r-cut Saphir und der a-b-Ebene des YBCO entspricht. Hierbei bieten sich unter eine großen Auswahl an Kandidaten besonders CeO_2 und YSZ an, wobei CeO_2 von seinen Gitterparametern eher dem YBCO ähnelt und YSZ näher beim Saphir liegt. Im folgenden werden die strukturellen Eigenschaften beider Materialien beschrieben und beim CeO_2 auf das Wachstum von YBCO auf den Puffer eingegangen.

Strukturelle Eigenschaften des CeO_2

CeO_2 besitzt eine kubische Kristallstruktur mit einer Gitterkonstanten von $5,41\text{\AA}$. Bei (001)-Wachstum des CeO_2 orientieren sich die Hauptachsen des CeO_2 ($[100]$ und $[010]$) entlang der $[10\bar{1}1]$ - bzw. $[1\bar{2}10]$ -Achse des Saphir mit den Gitterparametern $5,12\text{\AA}$ bzw. $4,76\text{\AA}$. Weiterhin entspricht die Gitterkonstante von CeO_2 ungefähr der Gitterdiagonalen der a-b Ebene (110) von YBCO ($5,45\text{\AA}$). Das CeO_2 wächst somit sowohl zum Saphir als auch zum YBCO um 45° verdreht auf (Abb. 3.15a u. b). Wegen der unterschiedlichen Gitterparameter der beiden Hauptachsen des Saphirs bestehen für das Gitter des CeO_2 bzgl. der Ausrichtung relativ zum Gitter des Saphir unterschiedliche Möglichkeiten, so daß die Gitterfehlانpassung ε_G zwischen Saphir und CeO_2 zwischen 6% und 14% schwanken kann. In Abb. 3.15c und Abb. 3.15d sind die beiden Extremfälle skizziert. Beide Ausrichtungen scheinen bei entsprechenden Depositionsprozessen möglich zu sein. In Tab. 3.3 sind die Gitterparameter für interessante Orientierungen von Saphir, CeO_2 und YBCO sowohl bei Raumtemperatur als auch bei

Depositionstemperatur aufgeführt, wobei letztere die entscheidenden für das Wachstum sind. Die Gitterfehlانpassung in der Dimension normal zur Substratoberfläche ist nur wichtig für das epitaktische Wachstum an Stufen. Dies wird in Zusammenhang mit den Ergebnissen für unterschiedliche Stufenmaterialien in Kap. 4.1.3.1 behandelt.

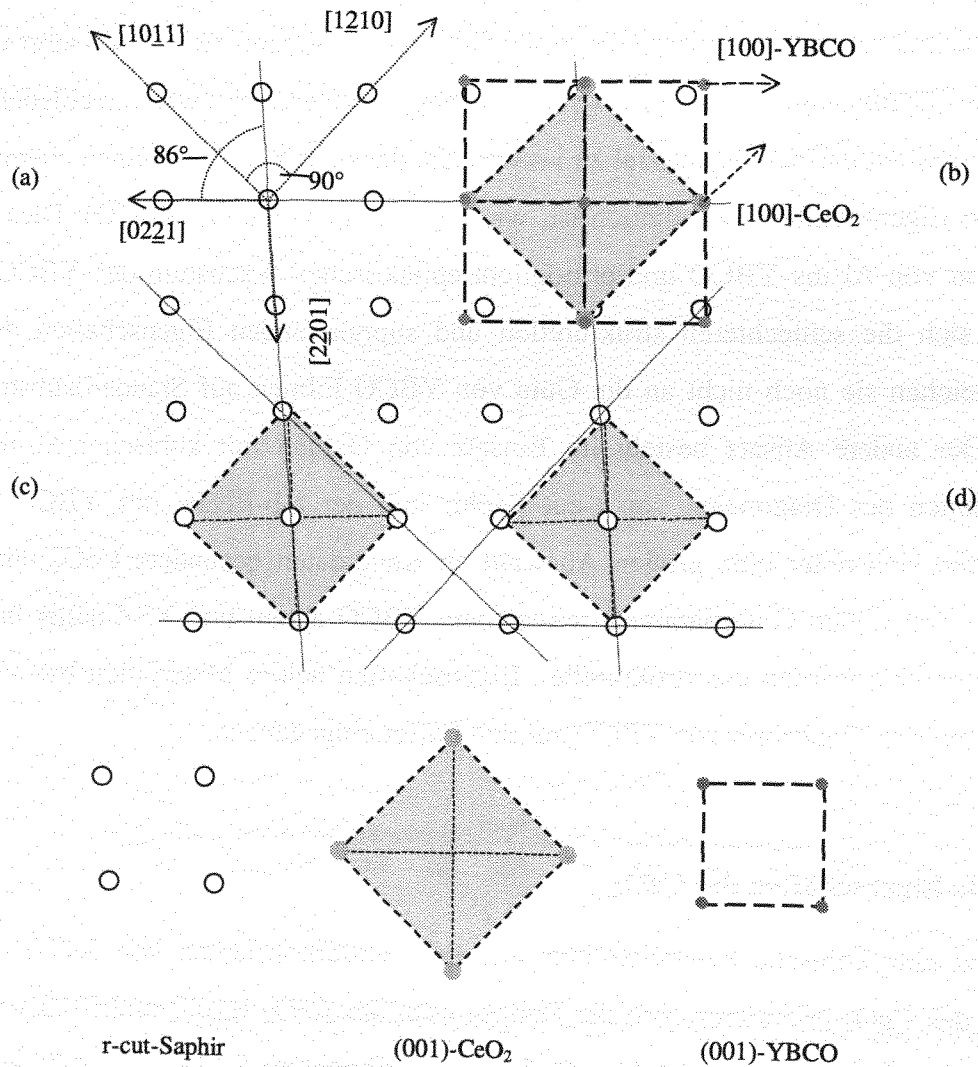


Abb. 3.15: Schematische Darstellung der Kristallorientierung. (a) r-cut des Saphirs, (b) Orientierung zwischen Saphir, CeO₂ und YBCO, (c) Ausrichtung des CeO₂ an der $[10\bar{1}1]$ -Hauptachse des Saphirs mit einer Gitterfehlانpassung von $\epsilon_G = 6\%$, (d) Ausrichtung des CeO₂ an der $[12\bar{1}0]$ -Hauptachse des Saphirs mit einer Gitterfehlانpassung von $\epsilon_G = 14\%$.

T [°C]	r-cut Saphir				CeO ₂		YBCO	
	[1011]	[1210]	[0221]	[2201]	[100]	[110]/2	[100]	[010]
20	5,12	4,76	3,48	3,48	5,41	3,83	3,82	3,89
700	5,16	4,79	3,50	3,50	5,44	3,85	3,92	3,92

Tab. 3.3: Vergleich der Gitterparameter (in Å) von r-cut Saphir, (001)-CeO₂ und (001)-YBCO bei Raum- und Depositionstemperatur ($T \approx 700\text{K}$, YBCO liegt dann in der tetragonalen Phase vor). (Vergleiche mit den Kristallorientierungen in Abb. 3.15.)

Bei dünnen Pufferschichten zeugen schmale Rockingkurvenbreiten von $\Delta\omega \approx 0,1^\circ$ scheinbar von einer extrem guten Kristallinität des CeO₂ (Abb. 3.16). Es wird dabei durch die alleinige Betrachtung der Halbwertsbreite (FWHM) jedoch meistens der breite Untergrund mit einer relativ geringen spektralen Intensität übersehen. Mit zunehmender Filmdicke wächst dieser, wohingegen die Intensität des schmalen Reflexes konstant bleibt. Ab einer gewissen Dicke ist nur noch der breite Reflex auflösbar (Abb. 3.16). Dieses Verhalten wurde aufgrund von TEM-Aufnahmen (Abb. 3.17) folgendermaßen interpretiert. Die untersten Lagen des CeO₂ wachsen extrem gut orientiert, allerdings wegen der großen Gitterfehlانpassung unter großer Spannung auf. Dieses manifestiert sich in dem schmalen Reflex. Ab einer gewissen Schichtdicke reicht die so angesammelte Spannungsenergie aus, um Defekte zu bilden, die Säulenwachstum hervorrufen (Abb. 3.17). D.h. es bilden sich CeO₂-Domänen, deren [001]-Achse gegeneinander in-plane verdreht und gegen die [1102]-Achse des Saphirs verkippt sind. Dieses wird sowohl durch Untersuchungen mittels Röntgendiffraktometrie, wonach CeO₂ unter einem Winkel von $0,018^\circ$ auf Saphir aufwächst [Zai97b], als auch durch Elektronenbeugung an Querschnitts-TEM-Proben [Wu92] bestätigt. Eine Verkipfung der Orientierung (abhängig von der Depositionstemperatur) ist auch bei MgO auf Saphir beobachtet worden. Die Verkipfung und damit das Säulenwachstum sind auf die große Gitterfehlانpassung zwischen Substrat und Puffer zurückzuführen. Diese kann entweder durch die beobachtete Verkipfung oder durch den Einbau von Defekten ausgeglichen werden, wobei sich die energetisch günstigere Variante durchsetzt. Die Breite der Rockingkurve in Abb. 3.16 ist demnach in der Überlagerung der Reflexe der gegeneinander leicht verdrehten Säulen begründet.

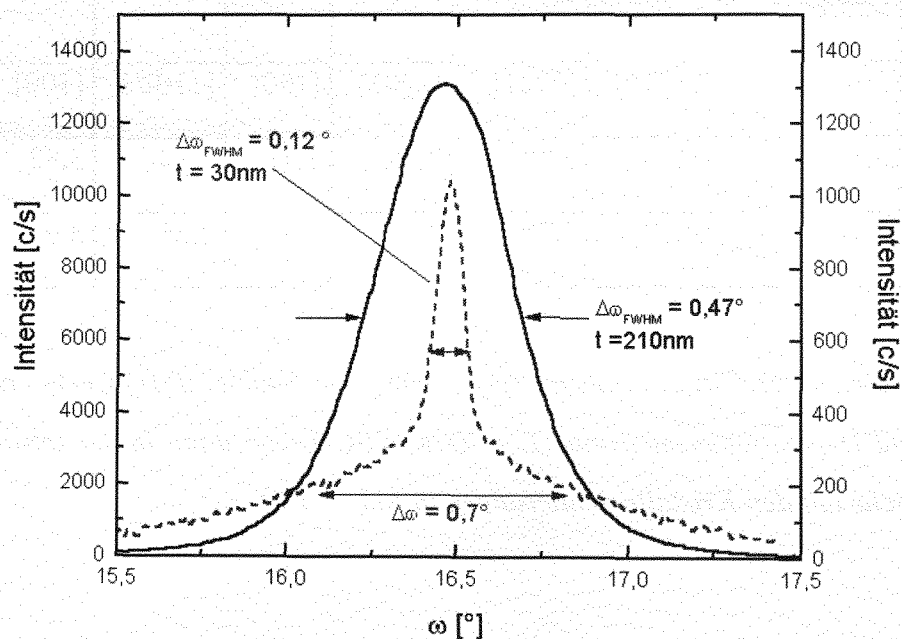


Abb. 3.16: Vergleich der Rockingkurve für den (002)-Reflex einer 210nm dicken CeO_2 -Schicht mit der Rockingkurve einer 30nm dünnen Schicht (gestrichelt). Hierbei ist zu beachten, daß sich die Skalen für die Intensitäten um den Faktor 10 unterscheiden.

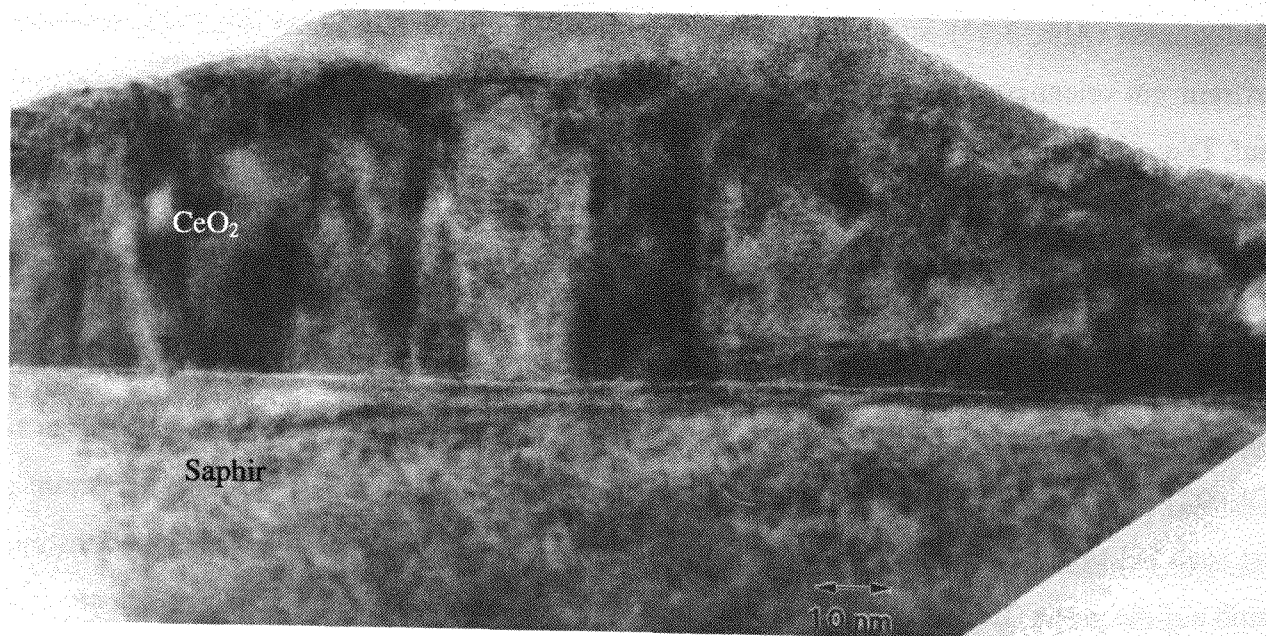


Abb. 3.17: TEM-Aufnahme des Säulenwachstums einer 90nm dicken CeO_2 -Schicht auf einem Saphirsubstrat.

Strukturelle Eigenschaften des YSZ

Bei YSZ (Yttrium stabilisiertes Zirkonoxid) ist zur Stabilisierung der kubischen Kristallstruktur ~9% des Zirkons durch Y_2O_3 substituiert. Mit einer Gitterkonstanten von $5,14\text{\AA}$ ergibt sich für YSZ eine Gitterfehlانpassung von 1% zur $[10\bar{1}1]$ - und 8% zur $[1\bar{2}10]$ des Saphirs sowie von 6% zur Diagonalen der a-b-Ebene des YBCO. D.h. das YSZ Gitter paßt eher zum Saphir-Gitter als zum YBCO-Gitter. Es ist beim Wachstum auf Saphir ähnlich wie bei CeO_2 eine (001)-Orientierung des YSZ zu erwarten.

Allerdings konnten auch (011)- und (111)-Wachstum mit einer entsprechend gedrehten in-plane Orientierung beobachtet werden (Abb. 3.18). Die $[111]$ -Orientierung ist für kubisch flächenzentrierte Materialien, so auch für YSZ, allgemein bevorzugt [Ber81]. Sie läßt sich durch Variation der Depositionstemperatur unterdrücken. So verringerte sich das Verhältnis der Volumenanteile der (111)/(001)-Orientierungen von 14 zu 0,3. Allerdings dominierte weiterhin die (011)-Orientierung die Textur.

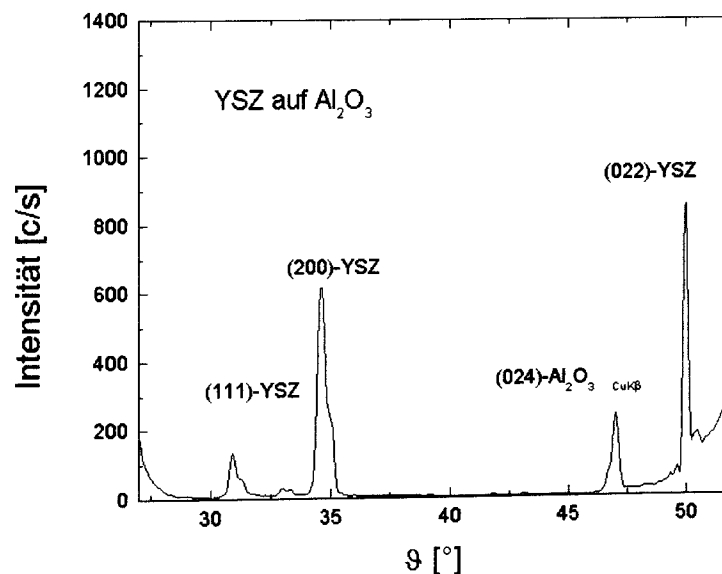


Abb. 3.18: Röntgenspektrum einer YSZ-Schicht auf r-cut Saphir in Bragg-Brentano-Geometrie. Der YSZ-Film besitzt drei unterschiedliche Orientierungen auf Saphir.

Zusammenfassend besitzt CeO_2 folgende Vorteile gegenüber YSZ. Es ist einfacher abzuscheiden, da es sich aus nur zwei Komponenten zusammensetzt. So konnte YSZ trotz Optimierung im Gegensatz zu CeO_2 nicht mit nur einer Orientierung abgeschieden werden. Weiterhin ist die Gitterfehlانpassung zu YBCO bei CeO_2 (1%) deutlich kleiner als bei YSZ (8%), was in einer

besseren Kristallqualität des YBCO resultiert. Aus diesen Gründen wurde in dieser Arbeit als Puffermaterial fast ausschließlich CeO_2 eingesetzt.

3.2 Strukturierung

In diesem Abschnitt soll die verwandte Technologie der Lithographie und der nachfolgenden Strukturierung von Substrat, Pufferschicht und YBCO-Film vorgestellt werden. Der Schwerpunkt dieser Arbeit lag auf der Optimierung eines reproduzierbaren und zur Waferskalierung bis zu 2“ geeigneten Prozesses zur Stufenherstellung auf unterschiedlichen und insbesondere technischen Substraten.

3.2.1 Stufenpräparation

Bei der reproduzierbaren Erzeugung von Stufen im Substrat oder in einer Zwischenschicht müssen unterschiedliche Bedingungen erfüllt werden. So darf durch den Prozeß die Substratoberfläche sowohl im geätzten als auch nicht geätzten Bereich nicht zu sehr geschädigt werden, um die Wachstumsbedingungen für den epitaktischen HTSL-Film nicht zu beeinträchtigen. Dasselbe gilt auch für die Fläche an der Stufe. Auch müssen Parameter, z.B. Stufenwinkel und Höhe der Kante (im Verhältnis zur Filmdicke), gut kontrollierbar sein. Dabei hängt der Stufenwinkel nicht nur vom Strukturierungsprozeß, sondern auch vom Substrat, d.h. vom Material, Kristallstruktur und Orientierung (sowohl der Substratoberfläche als auch der sog. in-plane Orientierung) ab. Für unterschiedliche Materialien ergeben sich deshalb bei gleichem Prozeß und Orientierung zum Teil deutlich unterschiedliche resultierende Stufenwinkel von $\alpha = 40^\circ$ - 85° (s. Tab. 3.4).

Material	Al_2O_3	CeO_2	LaAlO_3	SrTiO_3
Stufenwinkel α [°]	40	80-90	70-80	70-80

Tab. 3.4: Stufenwinkel von unterschiedlichen Materialien bei Verwendung von Standardparametern zur Stufenherstellung ($U = 500\text{V}$, $J = 0,5\text{mA/cm}^2$, $\vartheta = 45^\circ$ (entlang der Stufe)).

Dies wird durch die unterschiedlichen Ätzraten der sowohl unterschiedlichen Netzebenen als auch unterschiedlichen Materialien verursacht. Im Falle des isotropen Ätzens bliebe hauptsächlich die Netzebene mit der geringsten Ätzrate stehen. Beim hier vorliegendem anisotropen Ionenstrahlätzen spielt zusätzlich der Einfallswinkel eine Rolle. Deshalb ist der Stufenwinkel um so steiler, je größer die Ätzrate der Netzebenen ist, die parallel zur Substratoberfläche ausgerichtet sind.

Für die Ausbildung eines Stufenkontaktes an Stufen muß (a) der Film sowohl oberhalb und unterhalb der Stufe als auch auf der Stufenflanke epitaktisch aufwachsen, und (b) beim Wachstum der verschiedenen Bereiche an der Stufe mindestens eine Korngrenze entstehen:

(a) Für epitaktisches Wachstum auf der Stufe müssen die Stufen auf dem Substrat so in-plane orientiert sein, daß bei der anschließenden Deposition des YBCO die a- bzw. b-Achse des verzwillingten YBCO parallel zur Stufe ausgerichtet ist. Dieses ist für heteroepitaktisches Wachstum notwendig. Deshalb wurde bei den Substraten vor der Strukturierung der Stufen die in-plane Orientierung mittels Röntgendiffraktometrie bestimmt.

(b) Für die Ausbildung von Korngrenzen muß die Stufe eine gewisse Steilheit besitzen. Auf die Einzelheiten wird in Kap. 4.1.3.1 näher eingegangen.

Für Stufenkontakte auf LaAlO_3 hat es sich in Bezug auf die Maßhaltigkeit als vorteilhaft herausgestellt, die Substrate vor der Präparation der Stufen unter Depositionsbedingungen zu tempern. Dadurch wird die Verschiebung der Stufen in der darauf folgenden YBCO-Deposition minimiert.

Es wurden im Rahmen dieser Arbeit unterschiedliche Verfahren mit unterschiedlichen Maskenmaterialien (AZ-Lack/Gold, Niob bzw. YBCO) für die Strukturierung von Kanten in verschiedenen Materialien (SrTiO_3 , LaAlO_3 , Al_2O_3 und CeO_2) angewandt, die im folgendem kurz skizziert werden sollen.

Lack/Gold-Prozeß:

Für Standardsubstrate, bei denen der Stufenwinkel möglichst steil sein soll [Her95], erweist sich der Lack/Gold-Prozeß [Beu95] am vorteilhaftesten (Abb. 3.19). Dabei wird zunächst ein 30-40nm dicker Goldfilm auf das Substrat aufgetragen. Dieser vermittelt zum einen eine bessere Haftung des Lackes, zum anderen verhindert er, daß beim Belichten im transparenten Substrat gestreutes Licht zu einer diffusen, unscharfen Lackkante führt. Danach wird Photolack (AZ 5214) mit 4000U/min aufgeschleudert und 5 - 10min getrocknet. Eine Randentlackung ist bei 2 Zoll Wafern aufgrund der runden Geometrie nicht nötig. Der Lack wird optisch so belichtet ($P = 6\text{mW/cm}^2$, $t_b = 3,5\text{s}$) und entwickelt (Entwickler: AZ400 1:4), daß eine möglichst saubere und steile Lackkante entsteht. Diese wird nun durch Ionenstrahlätzen (Ion-Beam-Etching) auf das Substrat übertragen. Bei diesem nicht-reaktiven Trockenätzen werden Argon-Ionen durch ein Feld ($U = 500\text{eV}$) beschleunigt, so daß ein gleichförmiger gerichteter Strahl ($J = 0,5\text{mA/cm}^2$) auf die Probe auftrifft. Durch Impulsübertrag werden die Teilchen von der Oberfläche abgetragen. Da die ausgelösten Teilchen nicht flüchtig sind, redeponieren sie teilweise auf der Substratoberfläche. Wird dagegen unter einem Winkel von $\vartheta = 45^\circ$ entlang der Kante geätzt, wird aufgrund des gerichteten Impulsübertrags beim Ätzen die Redeposition vermieden und die Ätzrate mit $R = 15 - 16\text{ nm/min}$ maximal. Die resultierenden Stufen sind dennoch sehr steil [Her95]. Nach dem Ätzen muß das Substrat sehr sorgfältig gesäubert werden.

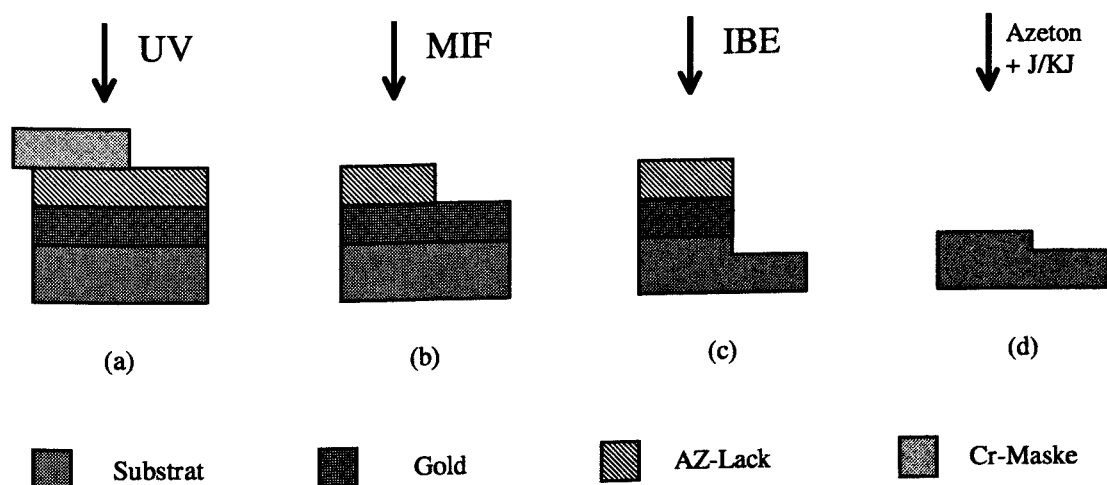


Abb. 3.19: Schematische Darstellung der Hauptschritte der Stufenpräparation mit dem Lack/Gold-Prozeß: (a) Belichten des AZ-Lackes, (b) entwickeln der Struktur, (c) ätzen der Kante mittels IBE und (d) entfernen des Lackes und des Goldes.

Dabei wird der Lack mit Azeton und das Gold mit einer Jod-Kaliumjodid-Lösung [Eid91] (4g KJ, 1g J und 150 g destilliertes Wasser) entfernt. Allerdings kann durch die Wärmeentwicklung gehärteter Lack und redeponiertes Material zurückbleiben. Diese Rückstände können mit Q-Tips, Azeton-Ultraschallbad und Sauerstoffplasma entfernt werden. Zum Abschluß werden die eventuell noch verschmutzten obersten Atomlagen mittels IBE mit geringer Leistung abgetragen. So wird das Substrat auf beiden Seiten der Stufe kurz angeätzt, erhält somit eine ähnliche Oberflächenmorphologie. In Abb. 3.20 ist ein typisches Beispiel einer sauberen, steilen Kante zu sehen.

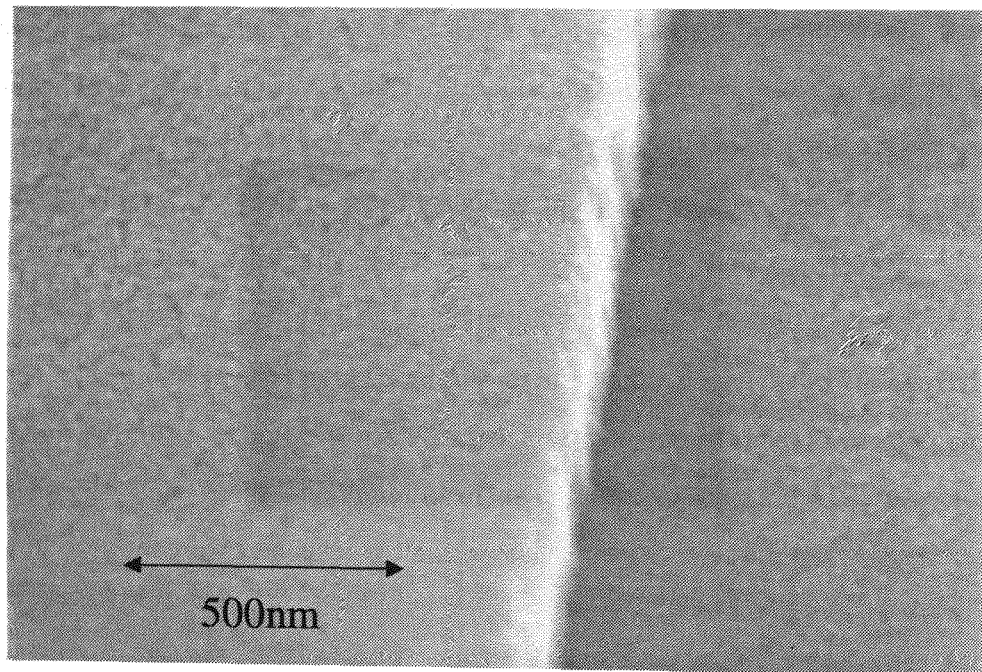


Abb. 3.20: Steile Stufe ($\alpha \approx 80^\circ$) im SrTiO_3 -Substrat mit $h = 250\text{nm}$ bei einer 100.000-fachen Vergrößerung.

Im Falle von Stufen in CeO_2 -Pufferschichten beträgt der optimale Stufenwinkel $\alpha \approx 60^\circ$ zur Substratoberfläche (s. Kap. 4.1.3.4). Zur Erzeugung dieses Winkels muß unter einem Winkel $\vartheta = 15^\circ$ bei Rotation geätzt werden. In diesem Fall ergibt sich mit Lackmasken ein Fuß am unteren Teil der eigentlichen Stufe (s. Abb. 4.11 (Stufe im Saphir)). Dieses liegt am schrägen Einfall der Ionen auf die Lackmaske, der für einen Abtrag der Lackmaske und damit eine sich ändernde Ätzgeometrie sorgt.

Niobmasken-Prozeß:

Wird statt mit Lack mit einer Nb-Maske gearbeitet, tritt letzterer Effekt (ein Fuß am unteren Teil der Stufe) nicht auf. Daher wurde dieser Prozess hauptsächlich für die Herstellung von Stufen in CeO_2 verwandt. Hierbei wird ein Trilayer-Prozeß benutzt (Abb. 3.21). Dazu wird als erstes auf den CeO_2 -Film eine 40nm dicke Goldschicht aufgedampft, die die Pufferschicht schützt und als Ätzstopper dient. Darauf wird als Metallmaske Niob abgeschieden. Da Nb- und CeO_2 -Film ähnliche Ätzraten beim nicht reaktiven Ionenstrahlätzen besitzen, muß die Nb-Schicht mindestens so dick sein wie die angestrebte Stufenhöhe. Als dritte Schicht wird bei 4000 U/min Photolack (AZ 5214) aufgebracht. Diese wird wie im oberen Prozeß mittels optischer Lithographie strukturiert.

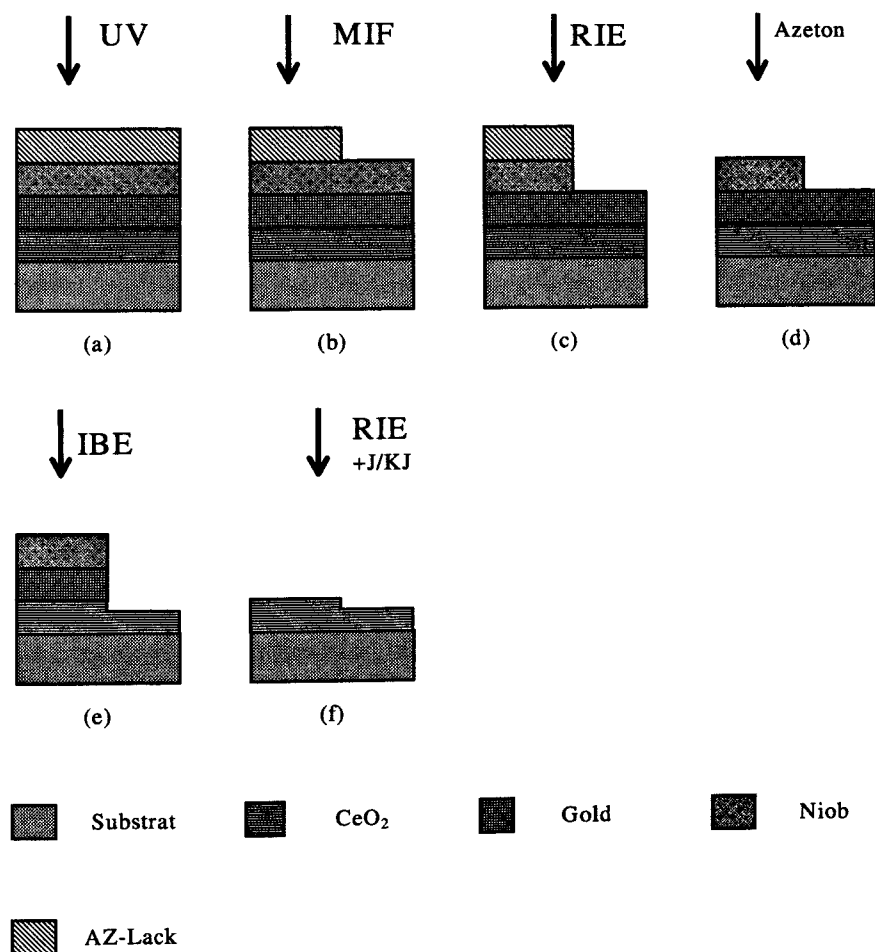


Abb. 3.21: Hauptschritte des Niobmasken-Prozesses beim Strukturieren einer Stufe: (a) Belichten einer AZ-Lackschicht, (b) Entwickeln mit MIF, (c) Übertragen der Struktur in die Niob-Schicht durch RIE, (d) Entfernen des restlichen Lackes mit Azeton, (e) Strukturieren des Stufenmaterials mittels IBE und (f) Säubern der Probe vom Niob und Gold.

Für das Ätzen der Nb-Metallschicht existieren unterschiedliche Möglichkeiten: naßchemisches Ätzen, Ionenstrahlätzen und reaktives Ionenätzen. Beim naßchemische Verfahren wird mit einer Mischung aus je drei Teilen HF und HNO₃ und vier Teilen Wasser geätzt. Die Ätzung erfolgt jedoch isotrop und scheidet somit für feine Strukturen aus. Ionenstrahlätzen ist für Multilagen ebenfalls weniger geeignet, da es nicht selektiv arbeitet.

Deshalb wurde das reaktive Ionenätzen gewählt. Dabei wird als Ätzgas Schwefelhexafluorid (SF₆) benutzt. Eine angelegte Hochfrequenzspannung versorgt eine Plasmaentladung, die das SF₆ in die Bruchstücke SF₄ und SF₂ aufspaltet. Die Ionen werden zum Substrat hin beschleunigt und führen zu einer anisotropen Ätzung durch die Bildung von flüchtigem Fluorid (NbF₅). Die gewählte Ätzrate von Niob beträgt dabei ungefähr 75nm/min (bei P = 25W und U = 120V). Da das Gold nicht mit den Ionen chemisch reagiert, wirkt es als Ätzstopper und als Schutzschicht für den CeO₂-Film. Allerdings findet in einem geringen Maße auch eine Zerstäubung durch die beschleunigten Teilchen statt. Deshalb wird der Endpunkt der Ätzung, d.h. der Übergang zwischen Niob- und Goldschicht, durch die Änderung der Reflektion der Oberfläche bestimmt. Gemessen wird sie mittels eines Laserstrahls, der auf die zu ätzende Schicht gerichtet ist.

Der Lack wird anschließend im Ultraschallbad mit Azeton und im Plasmaverascher entfernt, womit der erste Schritt, die Strukturierung der Metallmaske, abgeschlossen ist.

Das Übertragen der Struktur ins CeO₂ erfolgt mittels nicht-reaktivem Ionenstrahlätzen. Dabei wird, um flachere Stufen als $\alpha = 85^\circ$ (s. Tab. 3.4) zu erhalten, unter einem Winkel geätzt. So ergeben Ätzwinkel von $\vartheta = 15^\circ$ bzw. $\vartheta = 30^\circ$ Stufenwinkel von $\vartheta = 60^\circ$ bzw. $\vartheta = 40^\circ$. Für einen gleichmäßigen Abtrag über 2 Zoll wird der Teller rotiert. Dieses Verfahren bietet neben der Vermeidung des Fußes an der Stufe den Vorteil, daß sich beim Trockenätzen keine hartnäckigen Verbindungen aus Lack und redeponiertem Material bilden können, da der Lack schon vorher entfernt wird.

YBCO-Maskenprozeß:

Als ein weiteres alternatives Maskenmaterial kommt epitaktisches YBCO in Frage. Dieses hat den Vorteil, daß kein zusätzliches Material eingesetzt werden muß. Allerdings ist die YBCO-Deposition bei weitem aufwendiger als z.B. das Aufbringen der Au/Nb-Maske. Auch treten bei der Abscheidung des Films, aus dem die Kontakte strukturiert werden, große Nachteile auf. Da die YBCO-Maske chemisch entfernt werden muß, sammeln sich auf der Oberfläche Reaktionsprodukte (Abb. 3.22) an. Diese sind mechanisch nicht zu entfernen. Werden die

YBCO-Masken mittels PLD abgeschieden, so treten derartige Probleme wahrscheinlich aufgrund des schnelleren Wachstums und der damit verbundenen nicht so guten Haftung nicht auf [Mau98]. Die YBCO-Schichten, die auf die mit den Reaktionsprodukten verunreinigten Substrate abgeschieden wurden, zeigten ein deutlich unterdrücktes T_c . Somit war dieser Prozeß für diese Arbeit nicht geeignet.

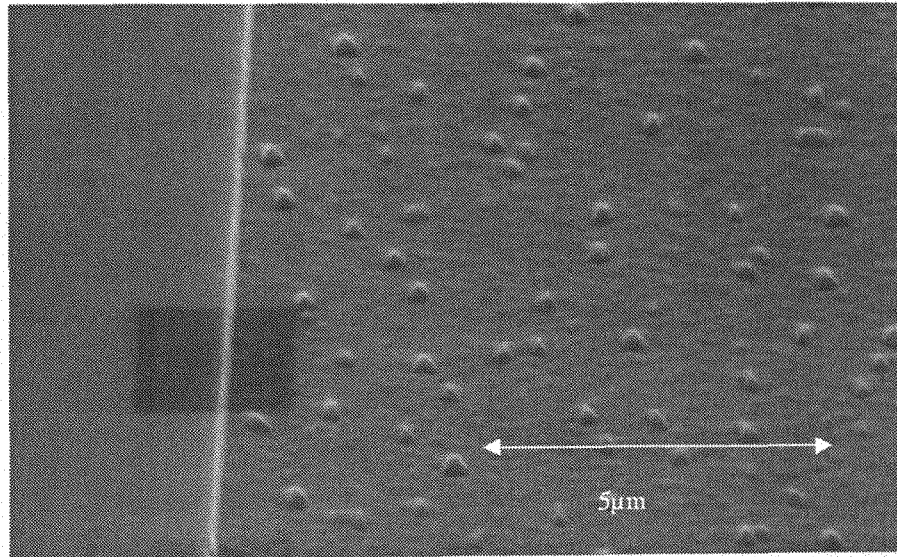


Abb. 3.22: SEM-Aufnahme einer Stufe, die mittel YBCO-Masken-Prozeß hergestellt wurde. Deutlich erkennt man die Reaktionsprodukte, die sich beim chemischen Entfernen der Maske bilden.

3.2.2 Strukturierung des YBCO-Films

Als nächster Schritt muß der YBCO-Film zu Einzelkontakten oder SQUIDs strukturiert werden. Des Weiteren wurden in einigen Fällen künstliche Defekte in Form von ca. μm großen Löchern eingefügt [Sel97]. Beides ist insbesondere bei der Waferskalierung nicht trivial, da über eine größere Fläche (hier 2“) die Positionierung der Masken auch in Mehrlagenprozessen möglichst genau eingehalten werden muß. Die Strukturierung der Filme geschieht normalerweise mittels optischer Lithographie und IBE. Am Institut wird ein Kontaktbelichter MA6 (Firma: Süss) mit einer Wellenlänge von $\lambda = 365\text{nm}$ eingesetzt. Damit werden auf glatten Siliziumwafern Strukturen bis zu $0.6\mu\text{m}$ erreicht. Bei rauheren YBCO-Schichten liegt die Grenze bei ungefähr

1 μm , wobei die Kante im Substrat zusätzliche Schwierigkeiten bereitet. Dort liegt die Chrommaske nicht direkt auf dem Lack, so daß nicht das wahre Abbild der Maske, sondern eine durch ein Beugungsbild verwaschene Struktur in den Lack übertragen wird.

Die Herstellung von YBCO-Strukturen verläuft ähnlich zu der Kantenherstellung in Standardsubstraten mit einer Lackmaske. Jedoch ist hier aufgrund der geringen Transparenz des YBCO keine Goldschicht notwendig (Abb. 3.23).

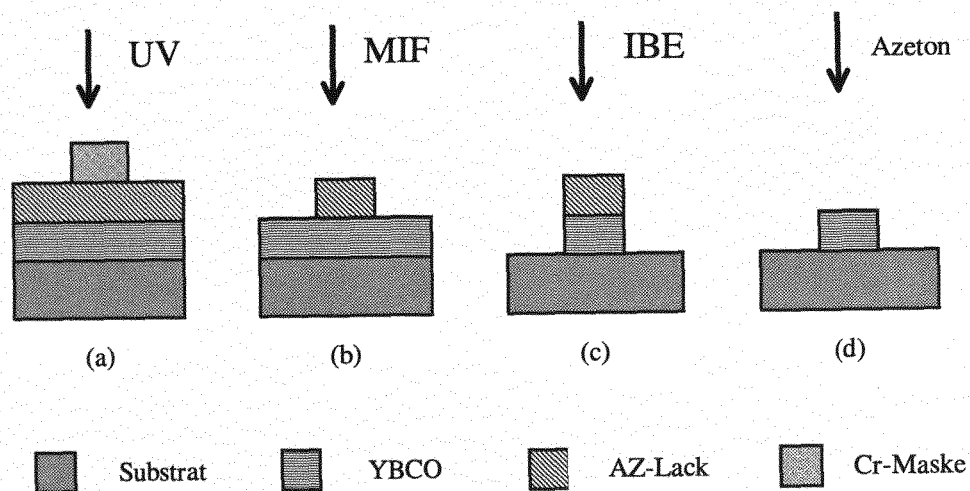


Abb. 3.23: Hauptschritte der YBCO-Strukturierung: (a) Belichtung des Lackes mit einer Cr-Maske, (b) Lackstruktur nach Behandlung mit MIF-Entwickler, (c) Trockenätzung durch IBE und (d) Entfernung des Lackes mit Azeton.

Es werden zunächst die gewünschten Strukturen mit optischer Lithographie (Belichtungszeit $t_b = 2,5\text{sec}$) von einer Chrommaske in den Lack übertragen. Die belichtete Struktur wird nun mit Argonionen geätzt. Die Befestigung des Substrates an den auf $T = -15^\circ\text{C}$ abgekühlten Probenstisch erfolgt mit Leitsilber oder Vakuumfett, um eine gute Wärmeleitung zu gewährleisten. Da bei höheren Temperaturen im Vakuum der Sauerstoff aus dem YBCO-Film diffundiert und der Lack festbacken kann, wird mit geringer Leistung, d.h. Strahlstromdichte $J = 0,25\text{mA/cm}^2$ und Ionenstrahlenergie $U = 250\text{eV}$, geätzt. Die Probe rotiert während der Ätzung, was einen gleichmäßigen Abtrag gewährleistet. Die Endpunktkontrolle des Prozesses geschieht optisch bzw. mittels SIMS (secondary ion mass spectrometry). Danach wird der Lack und das Leitsilber mit Azeton, das Vakuumfett mit n-Hexan entfernt.

Abschließend müssen noch mittels eines lift-off-Prozesses Kontaktpads aus Gold aufgebracht werden. Dazu wird eine Lackmaske erstellt, die an den Stellen, an denen die Goldpads platziert

werden sollen, offen ist. Bei der anschließenden Bedampfung mit 200nm Gold entstehen dort die Pads, während das restliche Gold danach im Azetonbad zusammen mit der Lackmaske weggespült wird.

Abb. 3.24 zeigt einen 2-Zoll-Saphir-Wafer, der mittels der oben vorgestellten Technologien hergestellt wurde.

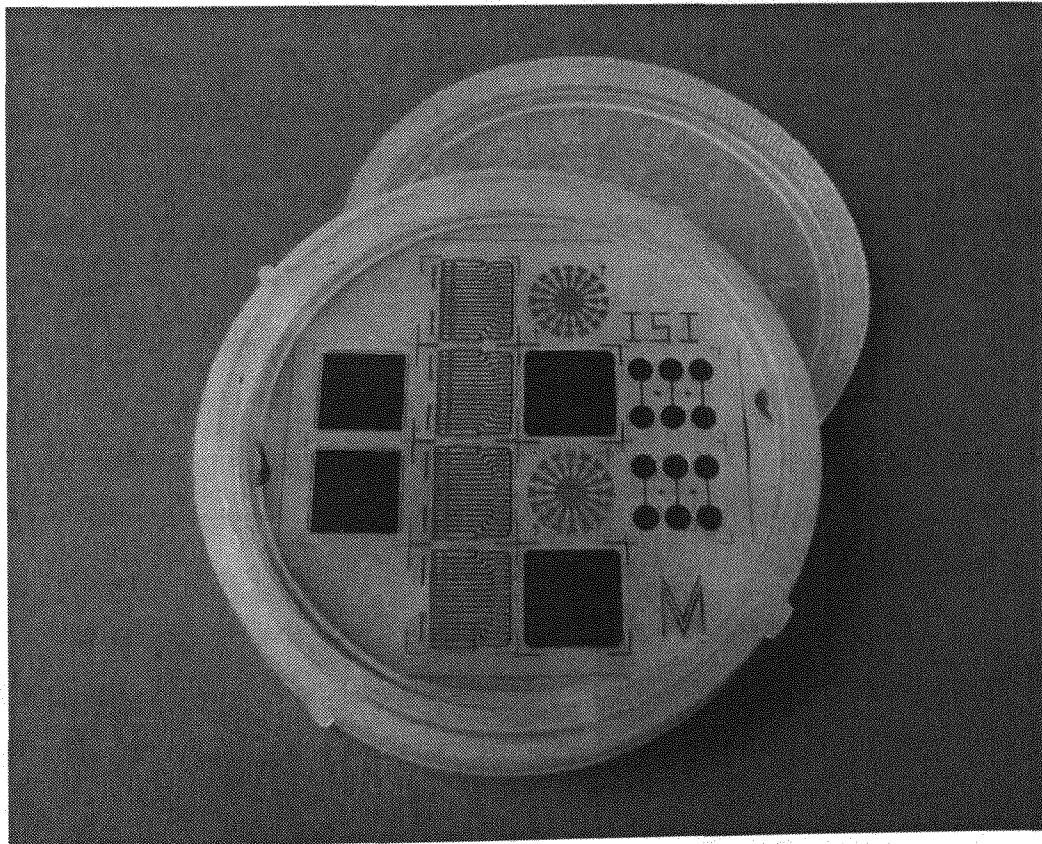


Abb. 3.24: Photographie eines strukturierten 2“-Saphir-Wafer. 2 rf-SQUIDs, 4×16 Kontaktstrukturen, 2×16 Kontaktstrukturen mit unterschiedlicher in-plane Orientierung der Stufe, 2 TEM-Strukturen und 2×3 planare Gradiometer (von links nach rechts).

4 Ergebnisse

Für die Überführung elektronischer Bauelementkomponenten, wie hier Josephson-Kontakte, in die Anwendung muß nicht nur ihre Funktionalität gewährleistet sein, sie müssen auch reproduzierbar und mit einer entsprechenden Ausbeute herzustellen sein. Beides kann z.B. erreicht werden, indem größere Substrate (2 Zoll), auf denen viele Komponenten platziert sind, simultan prozessiert werden. Die Vergrößerung der Waferfläche kann zusätzlich auch zur Verbesserung der Eigenschaften von Bauelementen führen. So kann z.B. bei planaren Gradiometern, deren Güte mit ihrer Größe skaliert, ihre Basislänge erhöht werden. Ferner verbessert sich die Homogenität der Schichten aufgrund der Flächenvergrößerung. Für bestimmte Anwendungen von Josephson-Kontakten in kryoelektronischen Bauelementen sind außerdem Substratmaterialien gefordert, die einen Aufbau von supraleitenden/halbleitenden Hybridsystemen ermöglichen oder hf-tauglich sind (z.B. für Frequenzmischer oder schnelle Strahlungsdetektoren im THz-Bereich). In Abschn. 3.1.3.1. wurde bereits gezeigt, daß die Trägermaterialien Saphir und LaAlO_3 über gute Mikrowelleneigenschaften verfügen. Hierbei zeichnet sich insbesondere Saphir durch extrem niedrige hf-Verluste aus. In diesem Kapitel soll nun untersucht werden, inwieweit Saphir im Vergleich zu anderen Substratmaterialien für die Herstellung von Stufenkontakten in Betracht kommt, und ob Bauelemente auf der Basis von Stufenkontakten großflächig in Mehrschichtsystemen reproduzierbar präpariert werden können. Deshalb werden in Abschn. 4.1 Technologien und geeignete Schichtsysteme für die großflächige Präparation von Stufenkontakte insbesondere auf Saphir vorgestellt und das Wachstum von YBCO-Filmen an Stufen auf diesen Schichtsystemen untersucht. In Kap. 4.2 erfolgt die elektrische Charakterisierung der so hergestellten Stufenkontakte. Abschließend wird in Kap. 4.3 der Einsatz der Stufenkontakte in aktiven supraleitenden Bauelementen (rf-SQUIDs) getestet.

4.1 Präparative Ergebnisse

Für eine erfolgreiche Waferskalierung von aktiven supraleitenden Bauelementen mit Josephson-Kontakten müssen (i) adäquate Depositionsverfahren bestimmt werden, (ii) geeignete, eventuell in diesem Bereich noch nicht eingesetzte, Substratmaterialien getestet werden und (iii) die Prozesse für die Präparation von Stufenkontakten an diese ‚neuen‘ Materialien angepaßt werden.

In diesem Abschnitt findet deshalb zuerst ein Vergleich zwischen Sputtern und PLD im Hinblick auf das Wachstumsverhalten der abgeschiedenen Filme an Stufen und die Abscheidung großflächiger Filme statt (Kap. 4.1.1). Danach wird die Skalierbarkeit der unterschiedlichen Substratmaterialien und der verschiedenen Prozesse, wie z.B. der Filmdeposition, untersucht (Kap. 4.1.2). Im Hauptteil werden die Besonderheiten der Stufenkontaktpräparation auf Saphir als einem für Waferskalierung und spezielle Anwendungen (z.B. hf- oder Hybrid-Anwendungen) geeignetem Material aufgezeigt (Kap.4.1.3). Abschließend werden die gewonnenen Erkenntnisse zusammengefaßt (Kap. 4.1.4).

4.1.1 YBCO-Wachstum an Stufen: Vergleich unterschiedlicher Abscheideverfahren

Durch den Vergleich des Filmwachstums gesputterter bzw. mittels PLD abgeschiedener YBCO-Filme an Stufen sollen der Einfluß der Kristallstruktur an der Stufe und die Unterschiede in der Deposition untersucht werden (s. [Gus97a]). Hierzu wurden Stufen mit einem Winkel von ca. 60° in Standardsubstraten (LaAlO_3) mittels Ionenstrahlätzen mit einem amorphen Kohlenstofffilm als Ätzmaske präpariert [Yi96]. Bei den gesputterten Proben betrug die Stufenhöhe 180nm und die YBCO-Schichtdicke 120nm. Bei den Laser ablatierten Proben war die Stufenhöhe und YBCO-Schichtdicke 200nm bzw. 150nm. Zunächst soll das Wachstum eines mittels TEM untersuchten gesputterten Films an einer Stufe beschrieben werden (Abb. 4.1).

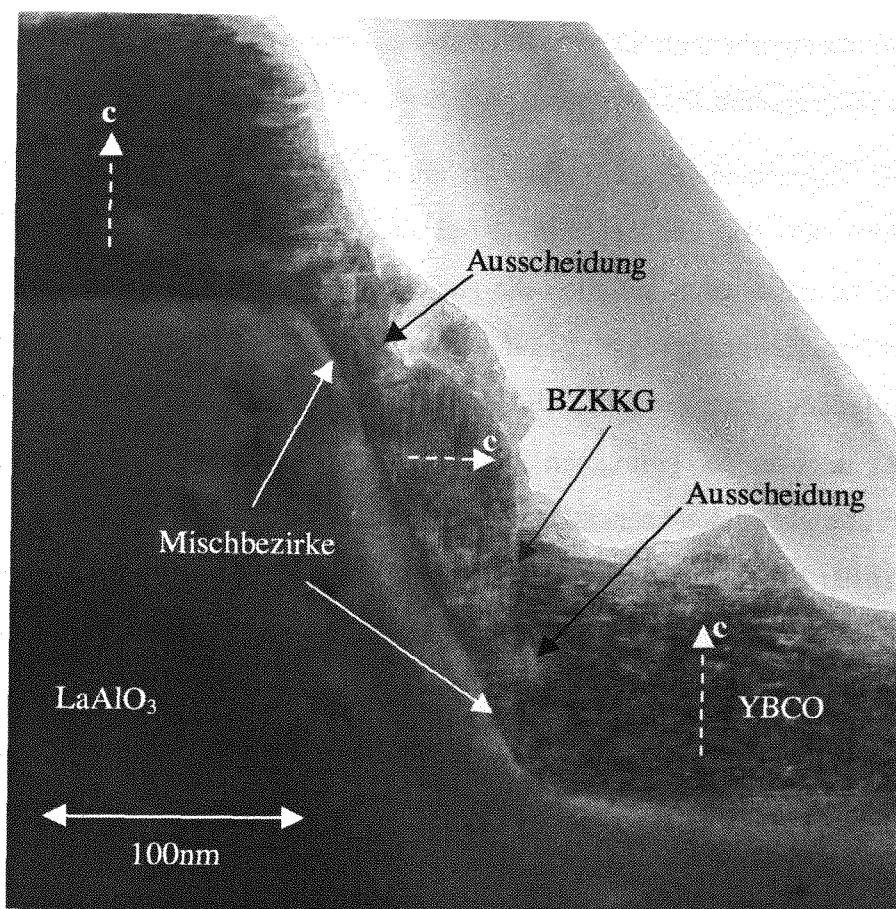


Abb. 4.1: TEM-Aufnahme eines 120nm dicken gesputterten YBCO-Films auf einer 60° steilen und 180 nm hohen Stufe in LaAlO_3 . An der Stufe wächst der YBCO-Film a-Achsen-orientiert. (Die gestrichelten Pfeile geben die Richtung der c-Achse an). Die Übergänge oben und unten an der Stufe setzen sich direkt an der Stufe aus kleinen Bezirken aus a- bzw. c-Achsen-orientiertem YBCO zusammen (Mischbezirke). Weiterhin treten dort Ausscheidungen auf. Der obere Teil des Übergangs unten an der Stufe besteht aus einer der Basalebene zugewandten Kippkorngränze (BZKKG).

Auf den Bereichen neben der Stufe wächst der Film c-Achsen-orientiert auf, während er auf der Stufenflanke hauptsächlich a-Achsen-orientiert aufwächst. Der Übergang zwischen dem a- und c-Achsen-orientierten Gebiet im oberen Bereich besteht direkt an der Stufe aus kleinen Segmenten von a- bzw. c-Achsen-orientiertem YBCO, die durch Korngrenzen unterschiedlicher Orientierung getrennt sind. Auf diesen Segmenten scheint in diesem Fall eine Ausscheidung, wahrscheinlich Y_2O_3 , gewachsen zu sein. Beim Übergang zwischen dem a- und c-Achsen-orientierten Gebiet (unterer Bereich) sind direkt an der Stufe wiederum durch Korngrenzen getrennte kleine Gebiete aus a- und c-Achsen-orientiertem YBCO gewachsen. Auch hier ist eine

kleine Ausscheidung zu erkennen. Daran schließt sich eine vertikale der Basalebene zugewandte Kippkorngrenze an (vgl. Abb. 2.15b).

Bei mittels PLD abgeschiedenen Schichten an einer identisch-hergestellten Stufe in LaAlO_3 wächst der Film an der Flanke rein a-Achsen-orientiert auf. In der entsprechenden TEM-Aufnahme ist daher auch lediglich die Ausbildung zweier Korngrenzen am oberen und unteren Stufenansatz sichtbar (Abb. 4.2). Für optimierte PLD-abgeschiedene Stufenkontakte ist bei gleicher Stufenhöhe eine größere Schichtdicke erforderlich als im Falle von gesputterten Kontakten. Dies liegt an der geringeren relativen Dicke des YBCO-Films an der Stufe (im Vergleich zur Filmdicke in den ebenen Bereichen neben der Stufe), eine Folge des anisotropen Teilchenfluß bei der PLD. Wichtig ist bei beiden Abscheideverfahren die in-plane Orientierung der Stufe. Nur bei einer Orientierung der Stufe entlang einer der beiden Hauptachsen in der LaAlO_3 -Substratoberfläche bilden sich die beiden Korngrenzen an der Stufe homogen entlang der Stufe aus. Bei Abweichungen von dieser in-plane Orientierung treten Fremdphasen (z.B. CuO -Partikel) oder Hohlräume an der Stufe auf [Gus97c].

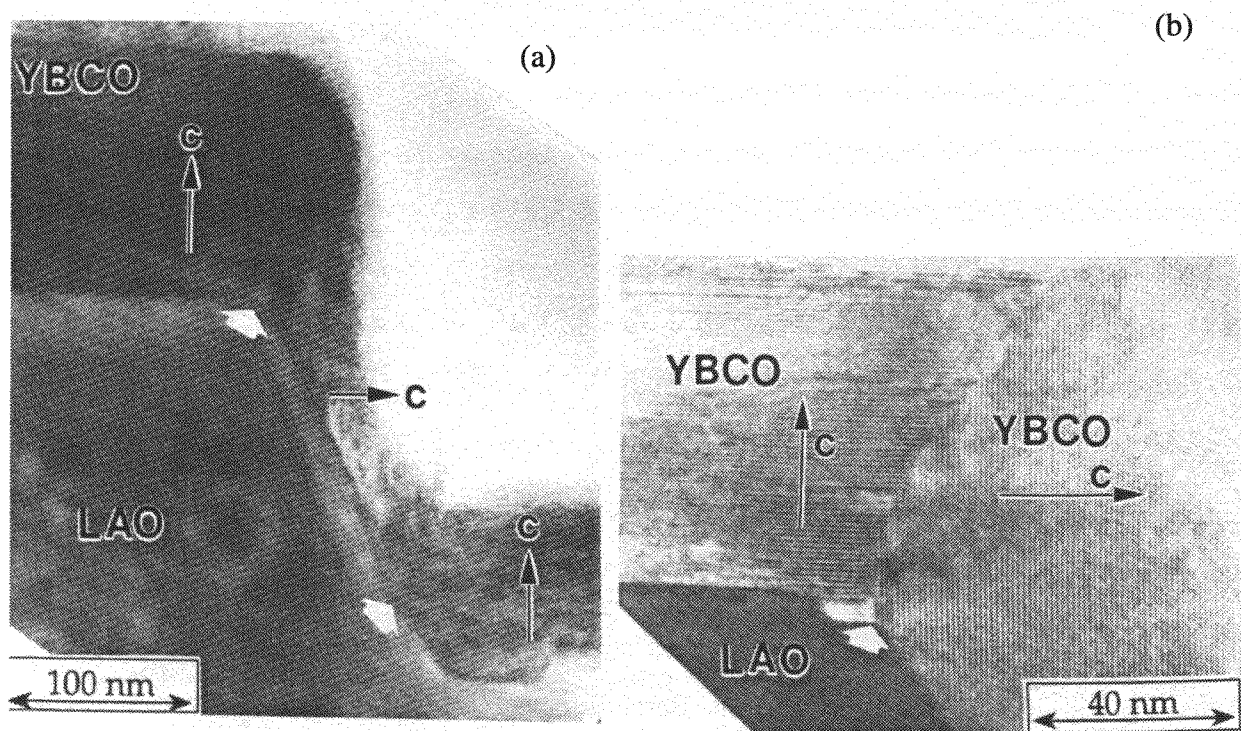


Abb. 4.2: TEM-Aufnahme eines PLD-abgeschiedenen YBCO-Filmes an einer LaAlO_3 -Stufe ($\alpha = 60^\circ$), (a) gesamte Stufe, (b) oberer Stufenbereich. Zwei Korngrenzen (weiße Pfeile) trennen den a-Achsen-orientierten Film auf der Stufenflanke und den c-Achsen-orientierten Film neben der Stufe. Die schwarzen Pfeile deuten die c-Achsen-Richtung der a- und c-Achsen-orientierten Bereiche an [Gus97b].

Das unterschiedliche Wachstum von gesputterten und ablatierten YBCO-Filmen an Stufen deutet auf unterschiedliche Wachstumsmechanismen bei den beiden benutzten Depositionstechniken hin. Die wichtigsten und wahrscheinlich hierfür verantwortlichen Unterschiede der beiden Abscheideverfahren sind in Tab. 4.1 aufgeführt.

Sputtern	PLD
kontinuierlich	gepulst (hier $f = 10\text{Hz}$, Pulsdauer = 25-30ns)
niedrige Abscheideraten ca. 1nm/min	hohe Abscheideraten ca. 60nm/min
isotroper Teilchenfluß	anisotroper Teilchenfluß

Tab. 4.1: Unterschiede zwischen Sputtern und PLD, die für das unterschiedliche Wachstum an Stufen verantwortlich sein können.

Beim Sputtern wird u.a. ein steter Teilchenstrom zugeführt, d.h. es liegt ein dynamisches Gleichgewicht vor, während bei dem PLD-Verfahren die Teilchen stoßweise am Substrat antreffen, um sich dann während einer gewissen Ruhezeit anzuordnen. Bei der Laserablation wurde eine Frequenz von 10Hz und eine Pulsdauer von 25-30ns verwandt. Es ist bekannt [Dam96], daß für diese durchaus typischen PLD-Abscheideparameter ein anderes Wachstum von YBCO als bei der Sputterdeposition auf orientierten Substraten vorliegt. So können die während der Pulse gebildeten Nukleationskerne (für Inseln unterschiedlicher Phase) relaxieren. Im Falle der Stufenkontakte bedeutet dies, daß sich gegebenenfalls bildende Fremdphasen oder -orientierungen im Falle des gepulsten Prozesses zugunsten der günstigeren a-Achsen-Orientierung auflösen. Dies ist sicherlich ein Vorteil des PLD-Prozesses für die Herstellung von Stufenkontakten.

Mit beiden Verfahren lassen sich funktionierende Korngrenzenkontakte mit ähnlichen elektrischen Eigenschaften herstellen, obwohl die gesputterten Filme an der Stufe Anteile von Fremdphasen und Fehlorientierungen des YBCO (c-Achsen-orientiert) aufweisen. So zeigten die in Kap. 4.2.2 vorgestellten elektrischen Messungen an gesputterten Stufenkontakten auf

Standardsubstraten Josephson-Verhalten, d.h. die IU-Kennlinie ähnelt dem RSJ-Modell (s. Abb. 4.9b) und die Modulation des kritischen Stromes im Magnetfeld einem Fraunhofermuster (s. Abb. 4.11b). Dies läßt darauf schließen, daß die intergranularen Eigenschaften einer Korngrenze und nicht die intragranularen Eigenschaften der Fremdphasen für die Unterdrückung des kritischen Stromes zuständig sind. Somit lassen sich die gesputterten Stufenkontakte trotz Fremdphasenanteile in der Stufe für aktive Bauelemente verwenden [Vau95]. Diese gesputterten Kontakte wurden in rf-Stufenkontakt-SQUIDs für unterschiedlichste Rauschmessungen an YBCO-Filmen eingesetzt und waren hinsichtlich der Rauscheigenschaften den PLD-abgeschiedenen SQUIDs überlegen [Sel97]. Deshalb wurde in dieser Arbeit die Kathodenzerstäubung als Abscheideverfahren gewählt, da diese im Hinblick auf die reproduzierbare großflächige Abscheidung homogener Filme insbesondere im Falle von Mehrlagenprozessen Vorteile aufweist. Die Überlegenheit dieses Depositionsprozesses wird z.B. durch die Ergebnisse bei der Herstellung planarer Gradiometer illustriert (s. Kap. 4.3). So ergaben nach der Optimierung der Parameter die elektronischen Messungen an gesputterten planaren Gradiometern auf 2 Zoll Wafern eine geringe Streuung von $\sigma = 12\%$. Diese ist geringer als bei planaren Gradiometern auf gleich prozessierten 1cm^2 -Substraten, deren Schichten mittels PLD in einem Prozeßgang („run“) abgeschieden wurden [Mau98]. Ferner ist es z.B. zur Verminderung des Rauschens möglich, die auf der Basis der Sputtertechnologie hergestellten planaren Gradiometer mit einer supraleitenden Abdeckung zu versehen. Dagegen treten bei den ablatierten Proben Kurzschlüsse aufgrund der für dieses Verfahren charakteristischen Ausscheidungen von Submikrometergröße, sog. „droplets“, zwischen den beiden YBCO-Schichten auf, welche die Qualität der Gradiometer stark verringern [Mau98].

4.1.2 Waferskalierung

Für die Übertragung des komplexen Herstellungsprozesses für aktive HTSL-Bauelemente von typischen Substratabmessungen von $10 \times 10 \text{mm}^2$ Substraten auf größere Wafer (hier: 2 Zoll) müssen (i) geeignete Substratmaterialien gefunden werden, auf denen die lithographisch erzeugten Strukturen über die gesamte Fläche möglichst identisch und reproduzierbar plazierbar sind, (Abbildungsungenauigkeiten durch Waferdurchbiegung und Strukturverschiebungen nach Temperschritten sind auch in der Si-Technologie bekannt) und (ii) die abgeschiedenen Filme

über die entsprechende Größe ausreichend homogen sein. Letzteres wurde in Ref. [Zai99] für YBCO-Schichten auf Saphir ausreichend demonstriert.

Für die Waferskalierung sind insbesondere die mechanischen Eigenschaften des Wafermaterials von Interesse. Deshalb wurde die Durchbiegung und die Masshaltigkeit verschiedener Substratmaterialien vor und nach dem Tempern bei Depositionstemperatur untersucht. Beides sind wichtige Kriterien für die Herstellung von Stufenkontakten oder Multilagern mit kleinen Strukturen, da in beiden Fällen die Strukturen in den aufeinanderfolgenden Schichten nicht zu stark aufgrund der Temperprozesse gegeneinander verschoben sein dürfen. So wurde die Veränderung des maximalen Höhenunterschieds, die durch Tempern der Substrate bei typischen Depositionstemperaturen von 750° verursacht wird, gemessen. Aus den Ergebnissen, die in Tab. 4.2 wiedergegeben sind, geht hervor, daß bei LSAT, SrTiO₃ und Saphir nur geringe Schwankungen auftreten, während hingegen bei LaAlO₃ die Veränderungen recht deutlich sind.

	<i>LSAT</i>		<i>SrTiO₃</i>		<i>Al₂O₃</i>		<i>NdGaO₃</i>		<i>LaAlO₃</i>	
	a	b	a	b	a	b	a	b	a	b
<i>Vorher</i>	-0.6	-0.6	+0.6	+0.2	+0.7	-0.1	-1.4	-1.8	-0.4	-0.4
<i>Nachher</i>	-0.6	-0.4	+0.6	+0.6	+0.3	+0.4	-0.7	-0.5	+1.2	+1.5
<i>Differenz</i>	0	+0.2	0	+0.4	-0.4	+0.5	+0.7	+1.3	+1.6	+1.9

Tab. 4.2: Durchbiegung verschiedener Substratmaterialien vor und nach dem Tempern bei Depositionstemperatur (1h bei 750°C und 1Bar in O₂-Atmosphäre). Es wird der maximale Höhenunterschied (in µm) von 1cm² großen Substraten über einen Bereich von 8mm ermittelt, wobei in zwei markierten senkrecht zueinander liegenden Richtungen gemessen wird (a,b).

Ähnliche Ergebnisse liefert die Auswertung der Maßhaltigkeit in der Substratebene durch Tempern (Abb. 4.3). So ist bei LaAlO₃ eine mangelnde Maßhaltigkeit festzustellen, da sich die Strukturen auf einem 2"-Wafer in einer Richtung über einen Bereich von 4cm um bis zu 10µm verschieben, während bei Saphir neben der Ungenauigkeit aufgrund der Lithographie keine meßbaren Verschiebungen festzustellen sind. Die großen Variationen sowohl senkrecht zum Substrat (Durchbiegung) als auch in der Substratebene sind auf den strukturellen Phasenübergang des LaAlO₃ bei T ≈ 500°C zurückzuführen (s. Tab. 3.1).

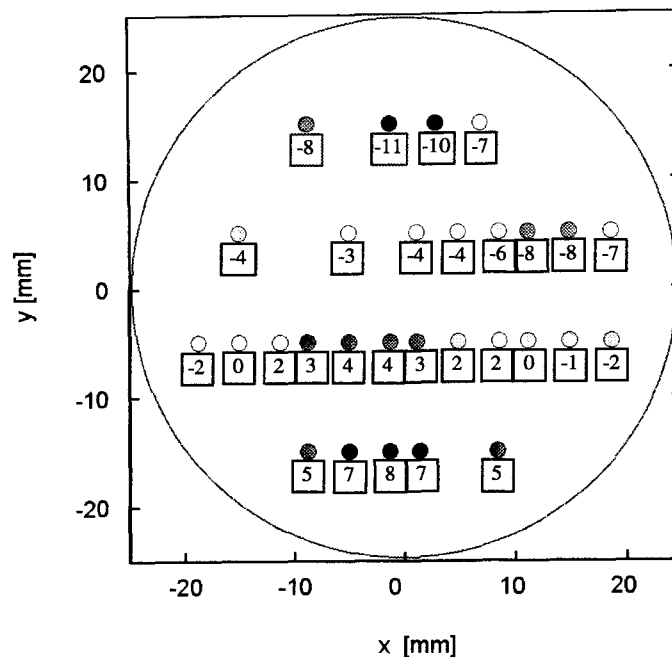


Abb. 4.3: Verschiebung der Strukturen (in nm) in einer Richtung parallel zur 2“-Waferoberfläche, aufgrund des Temperns bei Depositionstemperatur ($T = 750^{\circ}\text{C}$, $t = 3\text{h}$, $p = 450\text{mTorr}$, $\text{Ar}/\text{O}_2 = 2$). Die Graustufung gibt den Grad der Verschiebung an.

LSAT und SrTiO_3 eignen sich zwar aufgrund ihrer mechanischen Eigenschaften zur Waferskalierung, allerdings sind diese Materialien nicht in ausreichend großen Dimensionen erhältlich und besitzen nur unzureichende Mikrowelleneigenschaften (s. Tab. 3.1). In dieser Arbeit wurde deshalb hauptsächlich mit r-cut-Saphir als Substrat gearbeitet, da es neben seinen guten mechanischen Eigenschaften, die sich u.a. in der oben gezeigten guten Maßhaltigkeit wiederfinden, auch u.a. aufgrund seiner für Anwendungen wichtigen hf-Eigenschaften überzeugt (s. Tab. 3.1) und bis zu Größen von 8-Zoll zur Verfügung steht. LaAlO_3 wurde als Referenz- und Standardmaterial eingesetzt. Für dieses Material konnten schließlich die stabilsten und qualitativ besten Kontakte großflächig mittels Sputtertechnologie hergestellt werden. Die mangelnde Maßhaltigkeit konnte dadurch verbessert werden, daß die LaAlO_3 -Wafer vor der Stufenstrukturierung einem Temperprozeß unter Depositionsbedingungen ausgesetzt wurden. Hierdurch konnte die Maßhaltigkeit auf weniger als $5\mu\text{m}$ über einen 2“-Wafer verbessert werden. Allerdings bleibt das Problem, der aus dem Tempern resultierenden Rauigkeit der Substrate, bestehen.

Die großflächige Strukturierung der Proben wurde mittels Standardverfahren durchgeführt. Das Belichtungssystem für die optische Lithographie ist für 4-Zoll-Wafer ausgelegt, die Ionenstrahlätzanlage (IBE) ätzt bei Probenrotation über eine Fläche von 2-Zoll sehr homogen (Abb. 4.4).

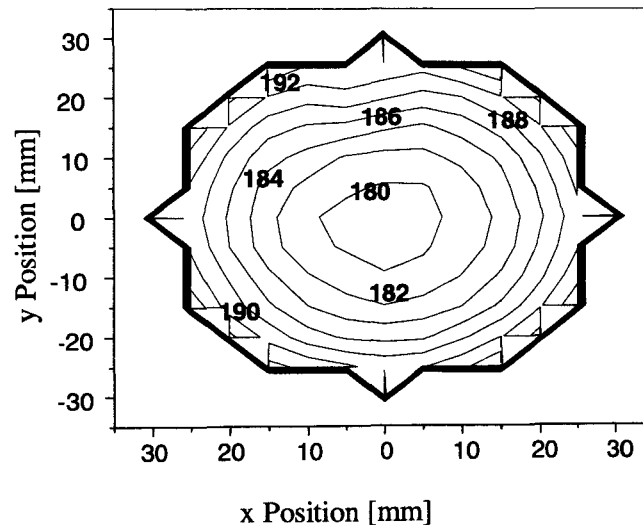


Abb. 4.4: Contourplot der Höhenvariation einer Siliziumoxidschicht nach einer IBE-Ätzung (500V, 88mA, mit Rotation, 8min.). Die Ätztiefe ist in nm angegeben. Der Abstand der Höhenlinien entspricht einem Höhenunterschied von 2nm [Leh98].

Bestätigt wird letzteres durch Messungen der Verteilung der Stufenhöhe für einen 2“-Saphir-Wafer, der mit identischen Stufenstrukturen versehen wurde. Die Abweichung vom Mittelwert der Stufenhöhe beträgt maximal 5% mit und 10% ohne Rotation (Abb. 4.5).

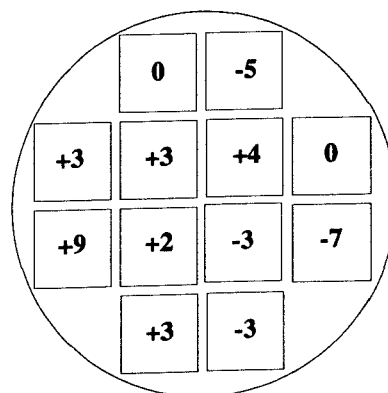


Abb. 4.5 Abweichung vom Mittelwert der Stufenhöhe ($h = 221\text{nm}$) über einen 2“-Wafer (in Prozent), (IBE-Parameter: 45° , parallel zur Kante, ohne Rotation, 500V, 88mA).

4.1.3 Präparation von Stufenkontakten auf 2“-Saphir

In diesem Abschnitt wird die Optimierung der Herstellung von Stufenkontakten mittels Sputterdeposition auf $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ dargestellt. Das Filmwachstum an der Stufe wird dabei mit Hilfe unterschiedlicher Verfahren (u.a. TEM) untersucht. Für die Stufenpositionierung auf Saphirsubstraten ergeben sich mehrere Möglichkeiten, da bei der Abscheidung von YBCO auf Saphir zur Vermeidung der chemischen Interdiffusion und wegen ihrer großen Gitterfehlانpassung eine zusätzliche Pufferschicht zwischen Al_2O_3 und YBCO benötigt wird. So kann die Stufe sowohl direkt ins Substrat als auch in die Pufferschicht geätzt werden (Abb. 4.6). Beide Verfahren werden im Folgenden untersucht und verglichen. Zum Verständnis des Wachstums der HTSL-Schicht an den unterschiedlichen Stufen müssen hierzu grundlegende Überlegungen vorangestellt werden, die die experimentellen Ergebnisse erklären helfen. Dazu sollen zwei Modelle, das *Netzebenenmodell* und das *Treppenstufenmodell*, eingeführt werden, mit denen das Wachstum an Stufen beschrieben und die experimentellen Untersuchungsergebnisse verglichen werden können.

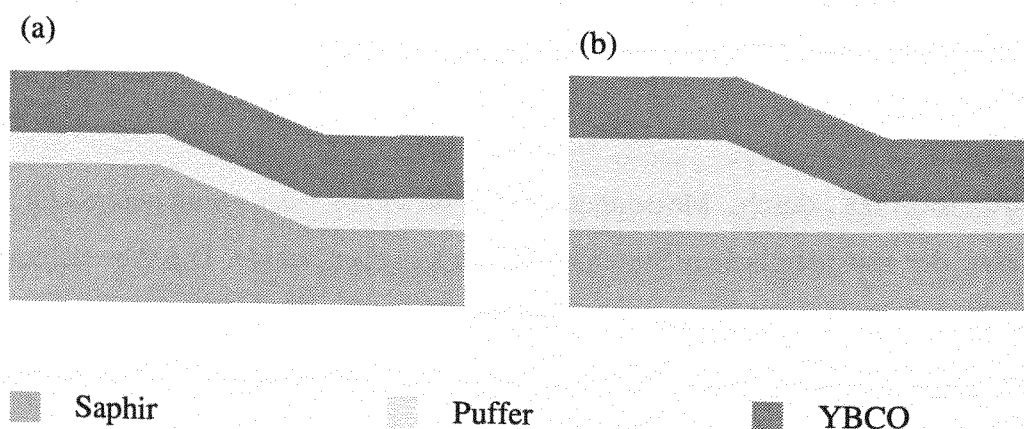


Abb. 4.6: Die unterschiedlichen Positionierungsmöglichkeiten von Stufen: (a) Stufe im Substrat, (b) Stufe in der Pufferschicht.

4.1.3.1 Schichtwachstum an Stufen

Während der Deposition von epitaktischen Schichten entstehen bevorzugt Keime mit der kleinstmöglichen Gitterfehlانpassung und folglich geringsten Verspannungsenergie. Jetzt soll dieser allgemeinen Ansatz auf das epitaktische Wachstum an Stufen übertragen werden. Es existieren zwei grundsätzlich verschiedene Ansätze zur Beschreibung epitaktischen Wachstums an Stufen: Im ersten Fall werden nur die Netzebenen betrachtet, im zweiten die exakte Morphologie des einkristallinen Stufenmaterials im Bereich der Stufe berücksichtigt (Abb. 4.7).

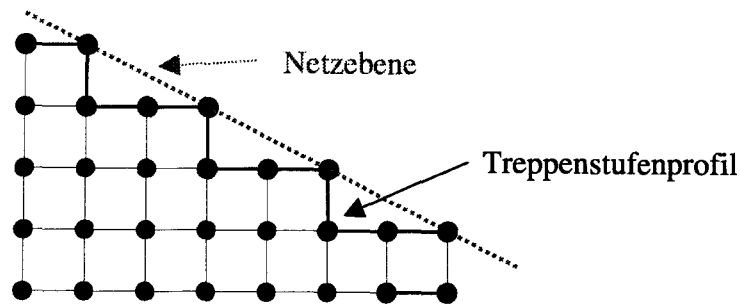


Abb. 4.7: Schematische Darstellung von Netzebenen- und Treppenstufenmodell. Beim Netzebenenmodell wird die Stufenoberfläche zu einer ebenen Fläche abstrahiert, wohingegen beim Treppenstufenmodell die mikroskopische Morphologie der Stufe berücksichtigt wird.

Beim *Netzebenenmodell* werden die Netzebenen, die von den Atomen der Oberfläche des zu beschichtenden Materials gebildet werden, mit denen des darauf wachsenden Filmes verglichen. So kann u.a. überprüft werden, inwieweit Epitaxiebedingungen erfüllt sind, d.h. Gitteranpassung erreicht werden kann. Die konkreten Strukturen der Oberfläche, in diesem Falle die Fläche an der Stufe, werden zu einer glatten Fläche abstrahiert. Sind nun die Gitterparameter des aufwachsenden Filmes denen der Netzebene sehr ähnlich, so kann der Film nach diesem Modell epitaktisch an der Stufenflanke aufwachsen. Die strukturelle Ausrichtung des Filmes würde dann durch den Stufenwinkel vorgegeben werden. Dies ist jedoch nur äußerst selten zu beobachten. Vielmehr kann das Netzebenenmodell an Stufenflanken nicht ohne weiteres eingesetzt werden, da in den meisten Fällen die Epitaxiebedingungen nicht durch die Netzebene, sondern durch die Ebenen senkrecht und waagrecht zur Substratoberfläche erfüllt werden. Dies wird beim morphologischen Ansatz (im Folgenden als *Treppenstufenmodell* bezeichnet) berücksichtigt. Das

Treppenstufenmodell bezieht die Mikrostruktur der Stufe, die aus Elementarzellen aufgebaut ist, mit ein. D.h. die Stufe besitzt ein treppenförmiges Profil, wobei in den meisten Fällen die Mindeststufenhöhe der Höhe einer Elementarzelle entspricht (Abb. 4.7). Bei beiden Modellen ist eine Orientierung der Stufe in der Substratebene, die sog. in-plane Orientierung, eminent wichtig. Im Folgenden werden anhand dieser Modelle unterschiedliche Stufenorientierungen (parallele Ausrichtung von Stufenmaterial und YBCO bzw. um 45° verdrehte Ausrichtung zwischen Stufenmaterial und YBCO) diskutiert. Dabei sollen vor allem die Fälle betrachtet werden, die für den Einsatz in YBCO-Stufenkontakten interessant sind.

Bei Substraten mit kleiner Gitterfehlانpassung zu YBCO, wie z.B. LaAlO_3 , verlaufen die kristallinen Hauptachsen von Film und Substrat parallel zueinander („cube on cube“). Ist die Stufe im Substrat parallel zur $[100]$ -Hauptachse des (001) -orientierten Substrates ausgerichtet, ergibt sich ein vertikales Treppenprofil (Abb. 4.8a). Nach dem Treppenstufenmodell ist nur das Verhältnis der Facettenflächen, das durch den Stufenwinkel bestimmt wird, für die Orientierung des darauf wachsenden Filmes entscheidend, da die Epitaxiebedingungen für die waagerechten und senkrechten Facetten erfüllt sind. Bei kleinem Stufenwinkel ($\alpha = 0^\circ\text{--}30^\circ$) dominiert c-Achsen-Wachstum, bei großem Stufenwinkel ($\alpha = 60^\circ\text{--}90^\circ$) a-Achsen-Wachstum. In diesem Fall bilden sich zwei 90° -Korngrenzen oben und unten an der Stufe zwischen den c- und a-Achsen-orientierten Bereichen des Filmes aus. Sind waagerechten und senkrechten Anteile etwa gleich groß ($\alpha \approx 45^\circ$), gibt es keine eindeutige Orientierung [Her95].

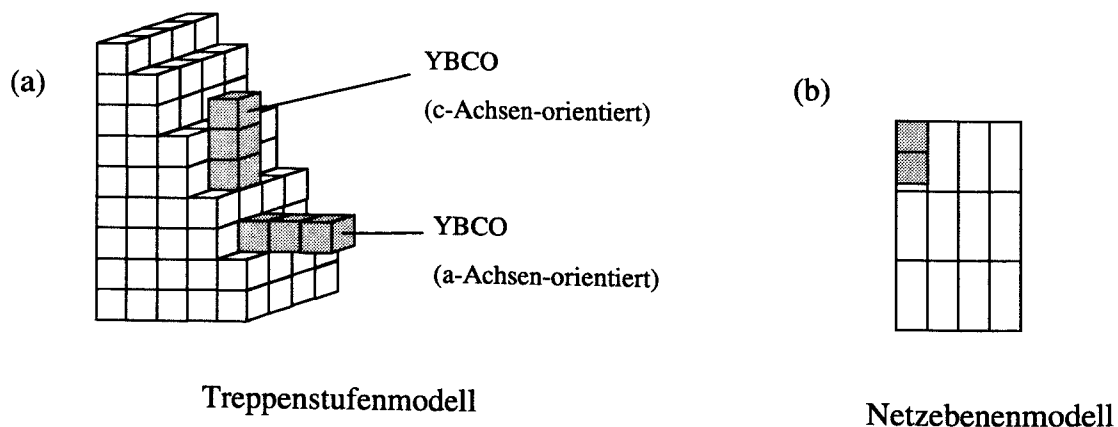


Abb. 4.8: (a) Skizze eines Treppenprofils einer in-plane orientierten Stufe ($\alpha = 63^\circ$) in einem Standardsubstrat (z.B. LaAlO_3). (b) Dazu im Vergleich die Darstellung der Netzebene der abstrahierten Flankenoberfläche für $\alpha = 63^\circ$. Die weißen Strukturen stellen das Substrat, die grauen unterschiedlich orientierte YBCO-Einheitenzellen dar.

Nach dem Netzebenenmodell allerdings entspricht bei einem Stufenwinkel von $\alpha = 45^\circ$ die Stufenflanke der (011)-Ebene des Substrates. Auf dieser Ebene wächst YBCO entweder (110)- oder (013)-orientiert auf (s. z.B. Ref. [Eom92]). Dies zeigt, daß abhängig von der Orientierung der Stufe und den Gitterparametern unterschiedliche Modelle zur Erklärung epitaktischen Wachstums herangezogen werden müssen.

Ist die Stufe nicht in-plane orientiert, so ergibt sich eine Kombination aus vertikalem und horizontalem Stufenprofil (Abb. 4.9a). Nach dem Treppenstufenmodell ist eindeutiges epitaktisches Wachstum nur möglich, wenn einer der Flankenflächenanteile dominiert. Im Netzebenenbild passen die Strukturen von Substrat und Film in diesem Fall weder in der horizontalen noch in der vertikalen Orientierung zusammen (Abb. 4.9b). D.h. wenn die Stufe nicht in-plane orientiert ist, ist das Wachstum in den meisten Fällen an der Stufe gestört, z.B. können andere Phasen und Hohlräume auftreten (s. Kap. 4.1.1).

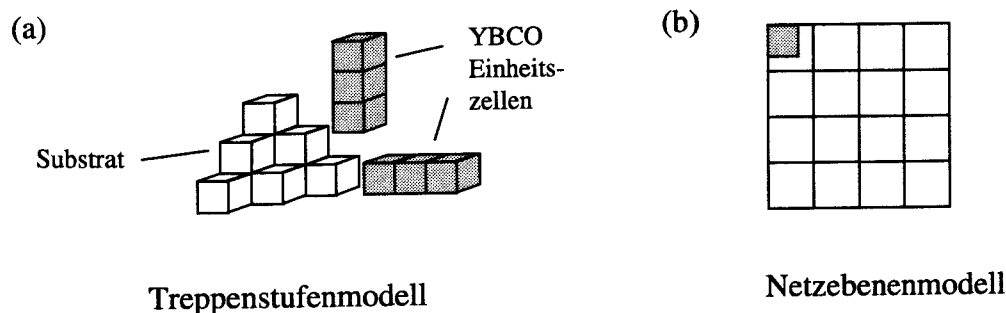


Abb. 4.9: Skizzen von (a) Treppenprofil und (b) Netzebene einer nicht in-plane orientierten Stufe ($\alpha \approx 54^\circ$). Die weißen Strukturen stellen das Substrat, die grauen YBCO-Einheitszellen dar.

Eine Besonderheit bilden Stufen in Materialien, auf denen YBCO epitaktisch, aber in der Ebene verdreht aufwächst. Dies ist z.B. für kubisches CeO_2 der Fall, dessen [110]-Gitterparameter dem zweifachen Gitterparameter der a- bzw. b-Achse des YBCO entspricht. Eine ausgezeichnete Ausrichtung von Stufen in CeO_2 in der Schichtebene liegt daher entlang der [110]-Orientierung des CeO_2 , d.h. parallel zu einer Hauptachse des r-cuts des Saphirs (Abb. 4.10), vor.

Nach dem Treppenstufenmodell für Epitaxie normal zur Substratoberfläche müßten sich die YBCO-Einheitszellen nun in den Facetten der CeO_2 -Oberfläche anordnen (Abb. 4.10a). Wegen der großen Gitterfehlpassung (Verhältnis der Gitterparameter $\text{CeO}_2/\text{YBCO} \approx 1,4$) sollte dieses jedoch nicht zu epitaktischem Wachstum führen. Nach dem Netzebenenmodell allerdings sind

die Epitaxiebedingungen für einen Stufenwinkel von ca. 55° erfüllt. In dem in Abb. 4.10b skizzierten Fall entspricht die Oberfläche der Stufenflanke der (111)-Ebene des CeO_2 . Es ergeben sich automatisch drei unterschiedliche epitaktische in-plane-Orientierungen für (001)-Wachstum von YBCO normal zur Stufenflanke (s. u.a. [Zai95]) (Abb. 4.10b). Keine dieser Orientierungen ist ausgezeichnet, jedoch könnte durch leichte Variation des Stufenwinkels eine Bevorzugung einer dieser Orientierungen erreicht werden. Nach dem Netzebenenmodell ist also epitaktisches c-Achsen-Wachstum senkrecht zur Stufe zu erwarten, jedoch liegt eventuell eine Verdrehung der Orientierung in der (111)-Ebene vor.

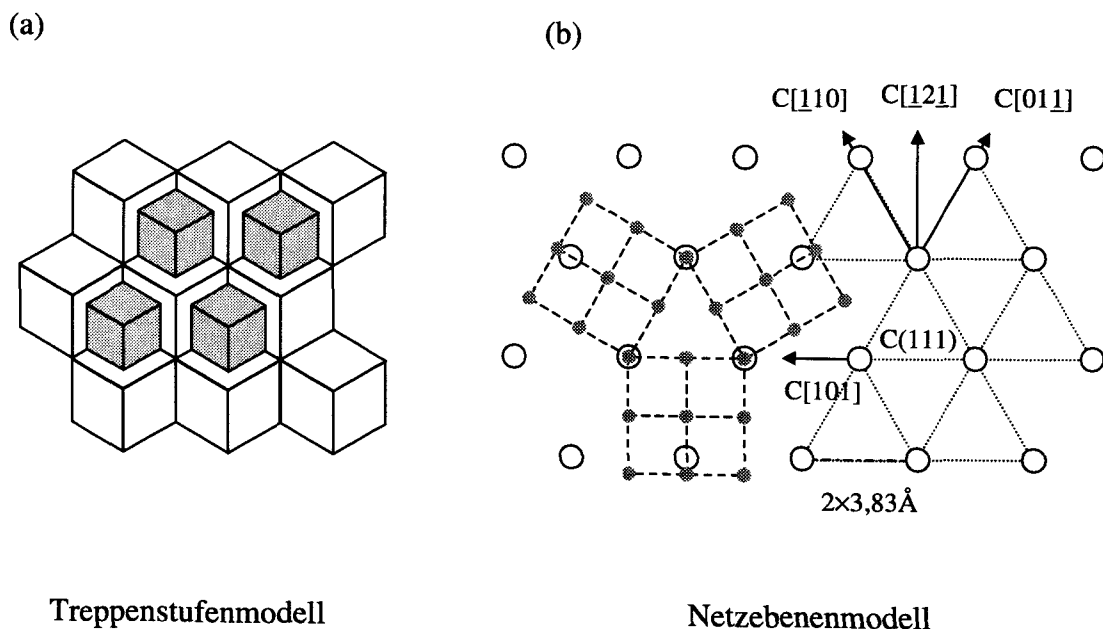


Abb. 4.10: Skizze einer in-plane orientierten Stufe ($\alpha \approx 55^\circ$) in CeO_2 und des möglichen Wachstums von YBCO auf der Basis des (a) Treppenstufen- bzw. (b) Netzebenenmodells. In (a) stellen die weißen Strukturen das CeO_2 -Gitter, die grauen YBCO-Unterzellen dar. In (b) deuten die offenen Kreise die hexagonale Struktur der (111)- CeO_2 -Ebene an. YBCO (graue Strukturen) kann auf dieser Ebene in drei unterschiedlichen jeweils um 60° gedrehten in-plane Orientierungen aufwachsen, wobei jeweils die Gitterfehlانpassung zwischen CeO_2 und YBCO entlang einer Achse weniger als 1% und entlang der dazu senkrechten Achse 13% beträgt.

Saphir selbst besitzt eine hexagonalen Kristallstruktur (s. Abb. 3.4). Anders als bei kubischen Kristallen erhält man im Falle von Stufen, die direkt ins Saphir geätzt worden sind, an der Stufe sehr stark verzerrte und stark von Stufenwinkel und -orientierung abhängige Netzebenen.

Epitaktisches Wachstum von CeO_2 an Stufen in Saphir wird somit von sehr exakter Einstellung der Stufenorientierung und des Stufenwinkels abhängig und scheint aus dieser Sicht (sowie aufgrund der nachfolgenden Ergebnisse) nahezu ausgeschlossen zu sein.

Zusammenfassend soll hier vermerkt werden, daß sich epitaktisches Wachstum durch beide Modelle erklären läßt, solange die Gitterfehlانpassung zwischen der Oberfläche (Netzebene oder Facetten der Treppenstufen) und des aufwachsenden Films gering ist. Die Minimierung der Fehlanpassung entscheidet, ob und nach welchem Modell die Schicht epitaktisch aufwächst. Dies zeigen insbesondere die Untersuchungen der Saphir/ CeO_2 /YBCO-Stufenkontakte.

4.1.3.2 Stufe im Saphir

Im ersten Ansatz wurden die Stufen direkt ins Saphirsubstrat geätzt. Die Stufen waren entlang der $[0221]$ - bzw. $[2201]$ -Richtung des r-cut-Saphirs ausgerichtet. Mit dem Lack/Goldprozeß (s. Kap. 3.2.1) und Ätzparametern von $U = 500\text{V}$, $J = 0,5\text{A/cm}^2$ und $\vartheta = 45^\circ$ (entlang der Stufe), ergeben sich Stufenwinkel von ungefähr 40° (s. Tab. 3.4). Auf diese relativ flache Stufe kann nun CeO_2 als Puffer und in-situ YBCO abgeschieden werden. Die elektrische Charakterisierung zeigte, daß Kontakte mit der Stufe im Saphir herstellbar sind, deren IU-Kennlinien dem RSJ-Modell ähneln (Abb. 4.11). Typische Stromdichten lagen bei 4,2K im Bereich von ca. 10^4A/cm^2 .

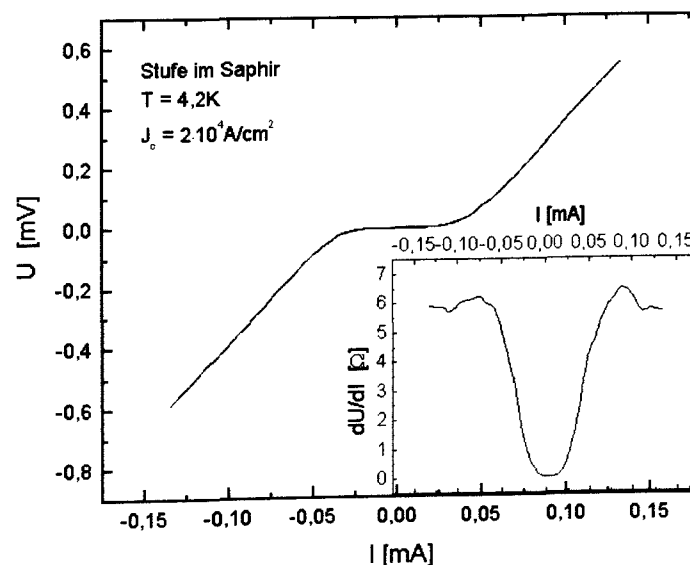


Abb. 4.11: IU-Kennlinie eines Stufenkontaktes mit der Stufe im Saphirsubstrat. Das Inset zeigt die Strom-Widerstands-Kennlinie des Kontaktes. ($T = 4,2\text{K}$, $J_c = 2 \cdot 10^4\text{A/cm}^2$, $R_{n, \text{diff}} \approx 6\Omega$, $I_c R_{n, \text{diff}} \approx 300\mu\text{A}$, wobei $R_{n, \text{diff}} (= dU/dI)$ der differentielle Widerstand im resistiven Bereich ist.)

Eine reproduzierbare Herstellung derartiger Kontakte erwies sich jedoch als nicht möglich. Die Eigenschaften (z.B. I_c , R_n) derartig hergestellter Kontakte streuten extrem. In den meisten Fällen lag Flux-Flow-Verhalten vor oder die Kontakte zerstörten sich relativ leicht beim Dünnen oder thermischen Zyklen.

TEM-Untersuchungen an diesen Stufenkontakten legen deutlich die Problematik derartiger Kontakte dar. Abb. 4.12 zeigt, daß das CeO_2 und deshalb auch das YBCO nicht epitaktisch, sondern polykristallin oder sogar mikrokristallin an der Stufe wachsen, was durch Beugungsbilder an den TEM-Aufnahmen bestätigt werden konnte.

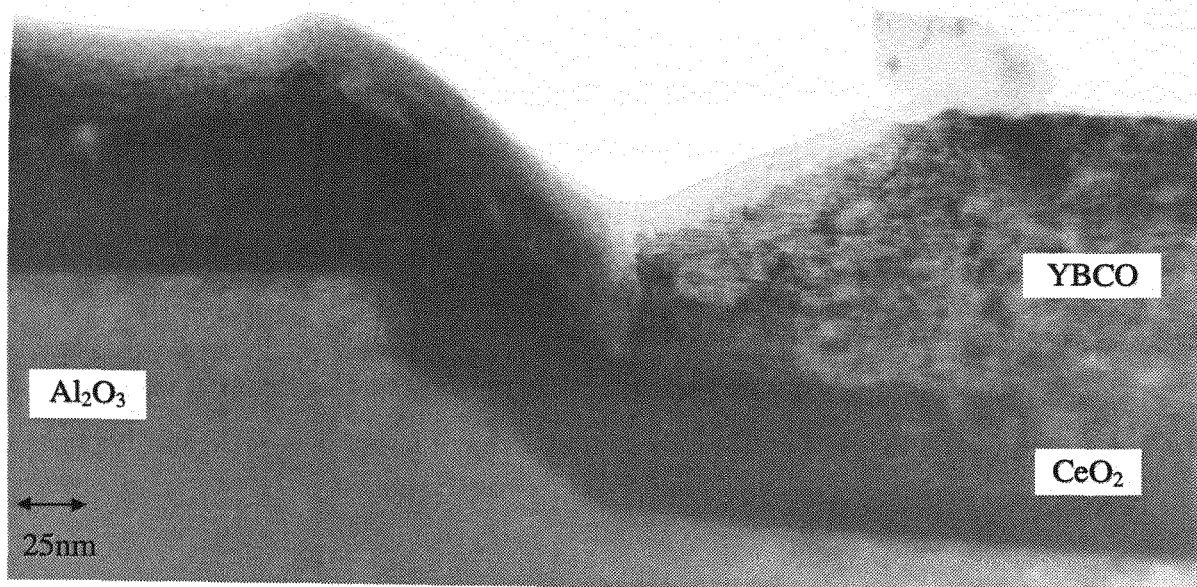


Abb. 4.12: TEM-Aufnahme einer 40° steilen Stufe im Saphir ($h = 70\text{nm}$) mit einem darauf abgeschiedenen CeO_2/YBCO -Schichtpaket ($t_{\text{CeO}_2} = 50\text{nm}$, $t_{\text{YBCO}} = 90\text{nm}$). CeO_2 und YBCO wächst an der Saphirstufe mikrokristallin auf, was durch Beugungsbilder an den TEM-Aufnahmen bestätigt werden konnte. Weiterhin ist der langgezogene Fuß unten an der Stufe zu erkennen (s. Kap.3.2.1).

Dies liegt, wie in Abschn. 4.1.3.1 angedeutet, wahrscheinlich an der komplizierten hexagonalen Kristallstruktur des $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$. Anders als bei kubischen Kristallen erhält man hier an der Stufe sehr stark von der jeweiligen Orientierung abhängige Netzebenen bzw. Treppenstufen. Damit ist ein einheitliches epitaktisches Wachstum auf einer derartigen Stufe im Saphir extrem unwahrscheinlich.

4.1.3.3 Stufe im Puffer

Die Alternative zur Stufe im Substrat bildet die Präparation der Stufe in der Pufferschicht. Für Saphir existieren nun eine Reihe unterschiedlicher, für diesen Zweck geeignete Puffersysteme, die alle eine kubische Kristallstruktur besitzen. In diesem Abschnitt werden zwei in Frage kommende Materialsysteme, nämlich CeO_2 und $\text{CeO}_2/\text{SrTiO}_3$, auf ihre Eignung als Stufensystem auf Saphir untersucht. Weiterhin wird auf das Problem der Rißbildung in Puffern aufgrund der Überschreitung der kritischen Schichtdicke eingegangen.

Für r-cut ($11\bar{0}2$)-Saphir kommen als Pufferschichten insbesondere CeO_2 und YSZ in Frage. Beide Systeme sind für die Stufenpräparation untersucht worden. Da das YSZ jedoch nicht einkristallin, in einer Orientierung auf Saphir abgeschieden werden konnte und es zudem eine größere Gitterfehlانpassung zu YBCO besitzt als CeO_2 , wurde in dieser Arbeit nur CeO_2 als erstes Puffermaterial auf Saphir eingesetzt.

Verwendet man Mehrfachschichten als Puffer, existieren zwei unterschiedliche Ansätze. Bei dem einen wird im ersten Schritt die Stufe in den unteren Puffer (hier: CeO_2) präpariert (Abb. 4.13b). Danach wird die Stufe zuerst mit einem dünnen Film aus dem gleichen Material, d.h. CeO_2 , abgedeckt (Homoepitaxie), um für den supraleitenden Film möglichst optimale Wachstumsbedingungen zu schaffen. Abschließend wird in-situ der YBCO-Film aufgebracht. Die so hergestellten Proben zeigten jedoch keinen Unterschied in den elektrischen Eigenschaften im Vergleich zu Proben ohne zweite Pufferschicht (Verfahren Abb. 4.13a).

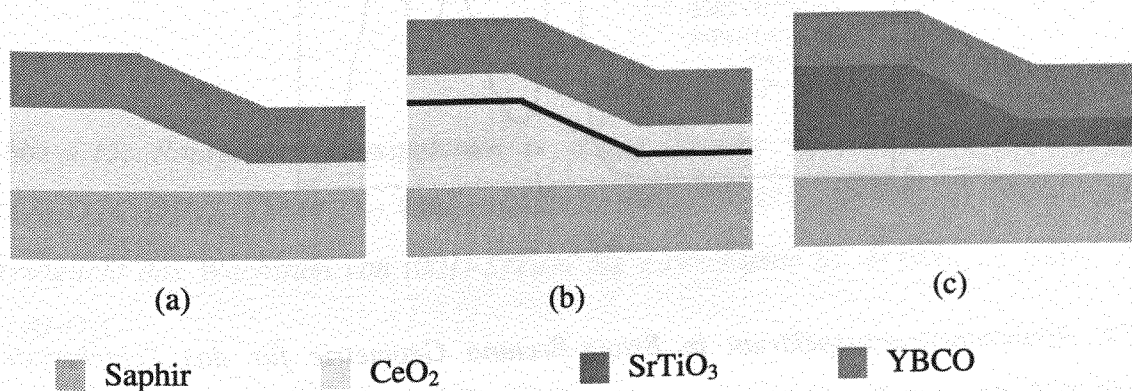


Abb. 4.13: Beispiel für Stufen in Puffersystemen: (a) eine Pufferschicht, (b) Stufe im unteren Puffer und anschließende homoepitaktische Abscheidung einer zweiten Pufferschicht sowie (c) Stufe im oberen Puffer.

Bei dem zweiten untersuchten 2-komponentigen Puffersystem gleicht der untere Puffer (CeO_2) lediglich die große Gitterfehlانpassung ans Saphir aus, und in den oberen Puffer (hier: SrTiO_3) wird die Stufe strukturiert (Abb. 4.13c). Motiviert wird die Verwendung von SrTiO_3 als zweites Puffermaterial zum einen durch die Tatsache, daß Stufenkontakte mit Stufen im SrTiO_3 -Substrat ((001)-orientiert) etabliert sind, zum anderen ist insbesondere das ferroelektrische SrTiO_3 in Verbindung mit YBCO auf einem hochfrequenztauglichen Material wie Saphir auch für andere Anwendungen (z.B. Phasenschieber) von hohem Interesse. Leider konnte das Schichtsystem ($\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3/\text{CeO}_2/\text{SrTiO}_3/\text{YBCO}$) in dieser Arbeit jedoch nicht in allen Schichten einkristallin hergestellt werden. Im gesamten untersuchten Parameterfenster wächst SrTiO_3 nicht in der gewünschten (001)-Orientierung, sondern nur (111)/(011)/(001)-mischorientiert auf (001)- CeO_2 auf. Es zeigte sich, daß durch Optimierung lediglich die (111)-Orientierung, nicht aber die (011)-Orientierung des SrTiO_3 unterdrückt werden kann. Darauf wächst YBCO allerdings nur in den (103/013)-Orientierungen auf (Abb. 4.14), die aufgrund der im Film entstehenden 90° -Dreh- und 90° -Kippkorngrenzen [Eom92, Mar92] für die Kontaktherstellung und den Stromtransport ungünstig sind.

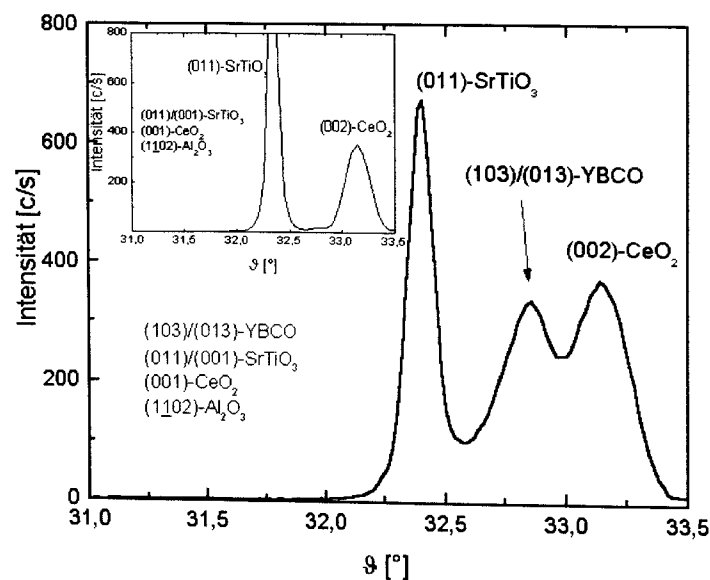


Abb. 4.14: Röntgenbeugungsspektrum in Bragg-Bretano Geometrie für das Schichtsystem ($\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3/\text{CeO}_2/\text{SrTiO}_3/\text{YBCO}$). Nach Optimierung wächst SrTiO_3 auf (001)- CeO_2 mit den beiden Orientierungen (011) bzw. (001) im Verhältnis 1/0,3 auf. Aufgrund der dominierenden (011)-Orientierung des SrTiO_3 wächst YBCO (103/013)-orientiert auf. Im Einsatz ist das Spektrum des Schichtsystems ($\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3/\text{CeO}_2/\text{SrTiO}_3$) gezeigt, um die Lage des YBCO-Reflexes zu verdeutlichen.

Abhilfe schafft hier eine weitere Pufferschicht z.B. aus YBCO, die als Epitaxievermittler zwischen CeO_2 und SrTiO_3 dient (s. a. [Ovs99, Ros92, Hun94]). Das komplexe Schichtpaket $[\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3/\text{CeO}_2/(001)\text{-YBCO}/(001)\text{-SrTiO}_3]$ konnte erfolgreich hergestellt werden (Abb. 4.15). Jedoch besaßen die 300nm dicken SrTiO_3 -Schichten eine relativ hohe Rauigkeit von ca. 30nm (peak to valley), so daß mit diesem System keine reproduzierbaren Stufen präpariert werden konnten.

Deshalb wurde in dieser Arbeit für die Strukturierung von Stufen auf Saphir nur eine CeO_2 -Pufferschicht eingesetzt, da die Nachteile der Mehrfachschichten, die aufwendigere Herstellung und die größere Rauigkeit, gegenüber den eventuellen Vorteilen, bessere Wachstumsbedingungen für YBCO insbesondere an der Stufe, zunächst überwiegen.

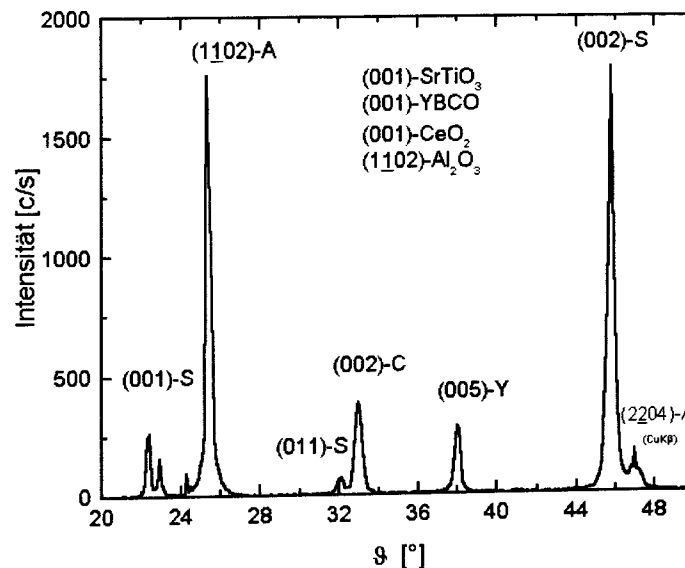


Abb. 4.15: Röntgenbeugungsspektrum in Bragg-Bretano Geometrie für das Schichtsystem $(\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3/\text{CeO}_2/\text{YBCO}/\text{SrTiO}_3)$. Eine zusätzliche $(001)\text{-YBCO}$ Pufferschicht auf der CeO_2 -Schicht ermöglicht das Wachstum von $(001)\text{-SrTiO}_3$ auf *r-cut*-Saphir (S: SrTiO_3 , C: CeO_2 , Y: YBCO, A: Al_2O_3).

Mikrorißbildung in HTSL/Pufferschichtsystemen

Ein Problem der Pufferschichten bzw. -schichtsysteme auf Saphir entsteht durch die notwendige Dicke der HTSL/Pufferschichtsysteme, die zu einer möglichen Bildung von Mikrorissen sowohl in den Pufferschichten als auch im YBCO-Film führt, sobald die kritische Schichtdicke t_c des Schichtsystems überschritten wird. Die Ursache für die Rißbildung liegt in dem großen Unterschied der Gitterparameter von Substratmaterial (hier: Saphir) und Schichtpaket (hier: CeO_2 -YBCO) in Kombination mit dem Unterschied in der thermischen Ausdehnung der beteiligten Materialien. In den für 30nm Schichtdicke strukturell-optimierten CeO_2 -Schichten konnten ab einer Schichtdicke von ungefähr 200nm sehr feine Mikrorisse detektiert werden (Abb. 4.16a). Diese verlaufen in einem regelmäßigen Muster parallel zu den Hauptachsen des Saphirsubstrates. Die Risse sind nur äußerst schwer mit optischer Mikroskopie und aufgrund der abdeckenden Goldschicht nicht mit dem SEM zu detektieren. Die kritische Schichtdicke von etwa 200nm entspricht ungefähr dem Wert, der für CeO_2 -Schichten in Kap. 3.1.5.3 bestimmt wurde. Ähnliche kritische Schichtdicken gelten auch für die Rißbildung in YBCO-Filmen (Abb. 4.16b und Abb. 3.10). Dies ist verständlich, da die Gitterfehlانpassung beider Systeme ähnlich ist. Allerdings wurde Rißbildung für CeO_2 -Schichten auf Saphir auch schon bei kleineren Schichtdicken von $t = 20\text{-}50\text{nm}$ beobachtet [Kit95].

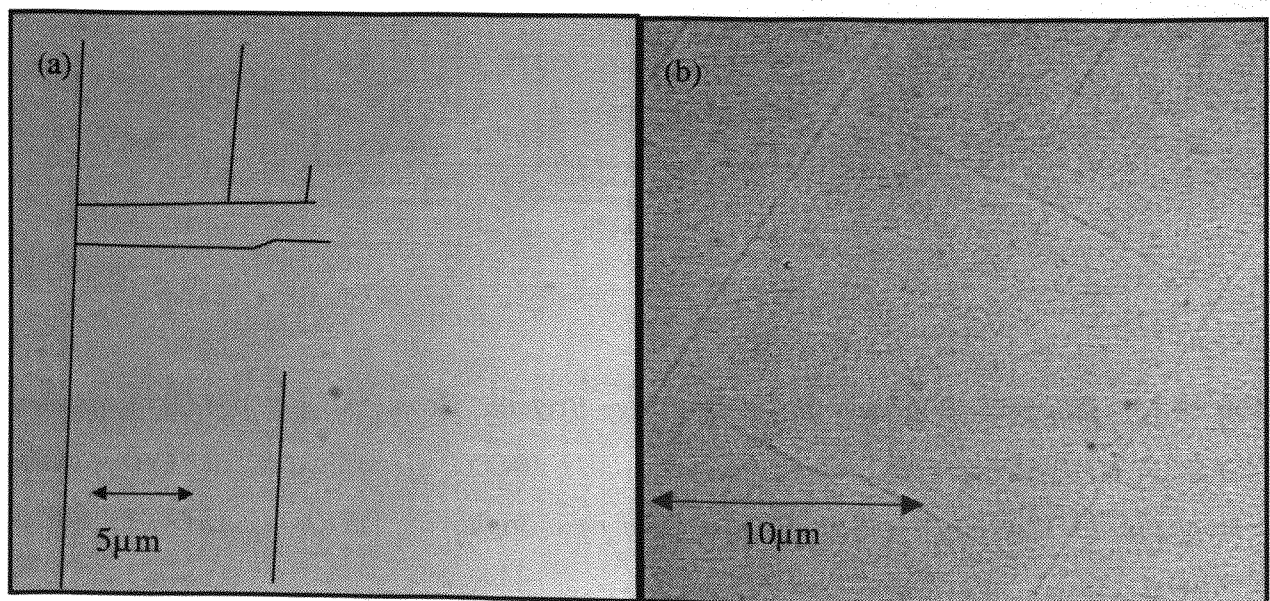


Abb. 4.16: (a) Risse in einem nicht optimierten CeO_2 -Film aufgenommen mit dem Konfokalmikroskop (In der linken Bildhälfte sind die Risse durch Linien verdeutlicht.), (b) SEM-Aufnahme von Rissen in einem YBCO-Film.

Mikrorisse treten bevorzugt an Schwachstellen in Schichtsystemen auf. Mit Hilfe von TEM-Aufnahmen (Abb. 4.17) konnten im unteren Bereich der Stufe bei einigen Proben feine Risse im CeO_2 erkannt werden. Sie haben eine Breite von ca. 2-3nm, ähnlich zu denen, die in dicken, unstrukturierten CeO_2 -Filmen auftreten. Durch die Stufe entsteht eine Schwächung im Film, auf die größere Kräfte als auf den nicht strukturierten Film wirken. Wenn der Film bei der YBCO-Abscheidung getempert wird, reißt der Film deshalb bevorzugt an der Stufe. Das YBCO wächst nicht auf dem Riß, so daß dort ein ca. 7-10nm breiter Spalt entsteht (s. Abb. 4.17). Teilweise werden die Risse wieder überwachsen, was u.a. erklärt, daß bei den elektrischen Messungen keine unendlichen Widerstände gemessen werden.

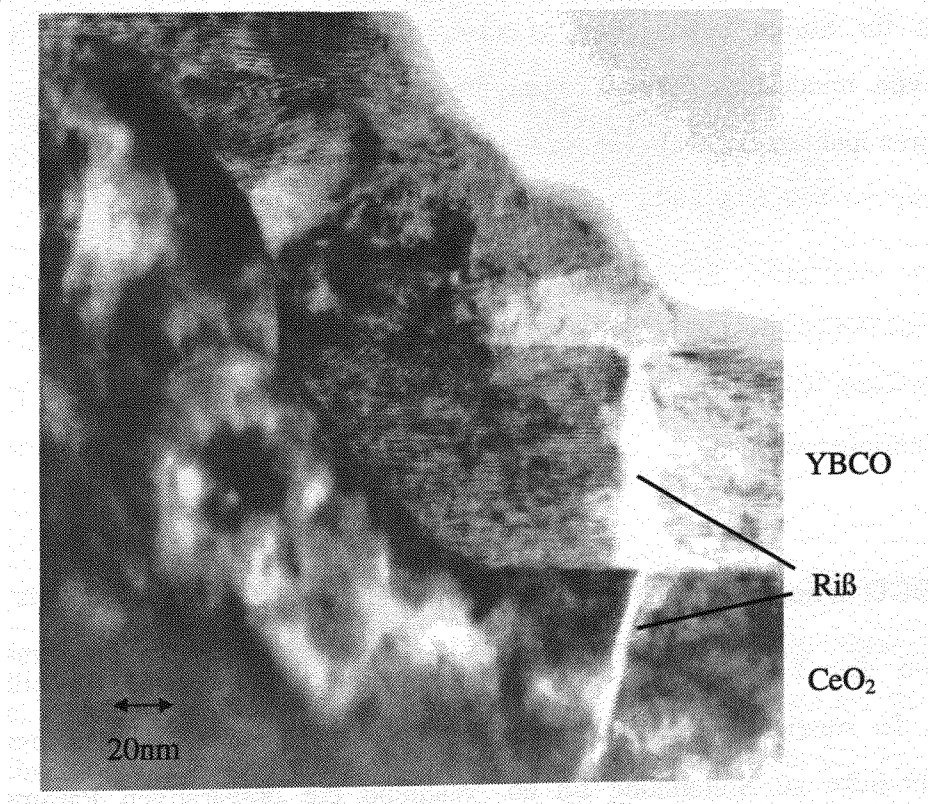


Abb. 4.17: TEM-Aufnahme eines Risses im CeO_2 und YBCO an einer Stufe im CeO_2 auf Saphir.

Ein Ansatz zur Vermeidung der Rißbildung besteht in einer bewußten und gezielten Verringerung der Kristallqualität durch den Einbau von Defekten (s. Kap. 3.1.5.3). Dieses führt dazu, daß die Spannungen an den Defekten relaxieren anstatt zur Rißbildung zu führen. Es bieten sich unterschiedliche Verfahren an, mit denen Defekte in die Schicht eingebaut werden können. Ein Verfahren besteht in der Absenkung der Depositionstemperatur, die zu einer gezielten Verschlechterung der Kristallinität führt [Zai97c]. Alternativ können Defekte in CeO_2 durch

einen modifizierten Abkühlprozeß erzeugt werden. Dabei wird die Schicht statt bei Atmosphärendruck bei dem Sputterdruck von $p = 100\text{mTorr}$ in O_2 abgekühlt. Wahrscheinlich bilden sich dabei aufgrund der unzureichenden Sauerstoffbeladung Defekte aus, die die entstehenden Spannungen aufnehmen können. Da dies ein irreversibler Prozeß ist, wird der Sauerstoff auch nicht mehr bei nachfolgenden Temperprozessen, wie der Deposition des YBCO, eingebaut. (Für die Deposition von YBCO ist dieses Verfahren nicht anwendbar, da der Sauerstoff im YBCO essentiell für die Supraleitung ist.)

Das alternative Verfahren der Sauerstoffbeladung bei tiefen Temperaturen wurde im Weiteren verwandt, um CeO_2 -Schichten von mindestens 300nm Dicke rißfrei ohne spürbare Einbußen der Schichtqualität für Stufen herzustellen. (CeO_2/YBCO -Schichtpakete konnten bis zu einer Gesamtdicke von mindestens 500nm rißfrei abgeschieden werden.) Allerdings können mit diesem Verfahren nicht die teilweise an Stufen auftretende Risse verhindert werden, die erst bei der Abscheidung der YBCO-Schicht zu entstehen scheinen.

Aus den oben skizzierten Erwägungen und Überlegungen wurde für die Mehrzahl der Präparationen als Puffer eine CeO_2 -Schicht (Dicke ca. 300nm) verwandt, die mit der Stufe (Höhe ca. 150nm) versehen wurde. Das Wachstum der YBCO-Schicht an der Stufe im CeO_2 soll im Folgenden beschrieben werden.

4.1.3.4 YBCO-Wachstum auf CeO_2 -Stufen

Das Wachstum des YBCO-Films an Stufen hängt u.a. von der Stufensteilheit α , der Aufwachsrate, der Ausrichtung und Energiedichte des ankommenden Teilchenflusses und dem Verhältnis Filmdicke zu Stufenhöhe t/h ab. Während die präparativen Parameter für die YBCO-Beschichtung nicht variiert wurden, wurde insbesondere der Einfluß der Parameter α und t/h auf Wachstum und Eigenschaften des Stufenkontaktes untersucht. Es werden als erstes TEM -Untersuchungen von Saphir/ CeO_2 /YBCO-Paketen mit flachen (40°), mittleren (60°) und steilen (85°) Stufen im CeO_2 vorgestellt. Diese sollen Aufschluß darüber geben, bei welchem Winkel Korngrenzen an der Stufe entstehen können.

Auf flache Stufen ($\alpha = 6^\circ\text{--}40^\circ$) wächst das YBCO durchgehend c-Achsen-orientiert. Jedoch sind bei $\alpha \approx 40^\circ$ im Gegensatz zu kleineren Winkeln ($\alpha \approx 6^\circ$) bereits andere Phasen an der Stufe zu erkennen (Abb. 4.18). D.h. bei diesem Stufenwinkel ist die Gitterfehlانpassung unabhängig vom verwendeten Modell (Netzebenen- oder Treppenstufenmodell) so groß, daß die Bedingungen für das epitaktische Wachstum des YBCO nur unzureichend bzw. nicht eindeutig erfüllt werden.

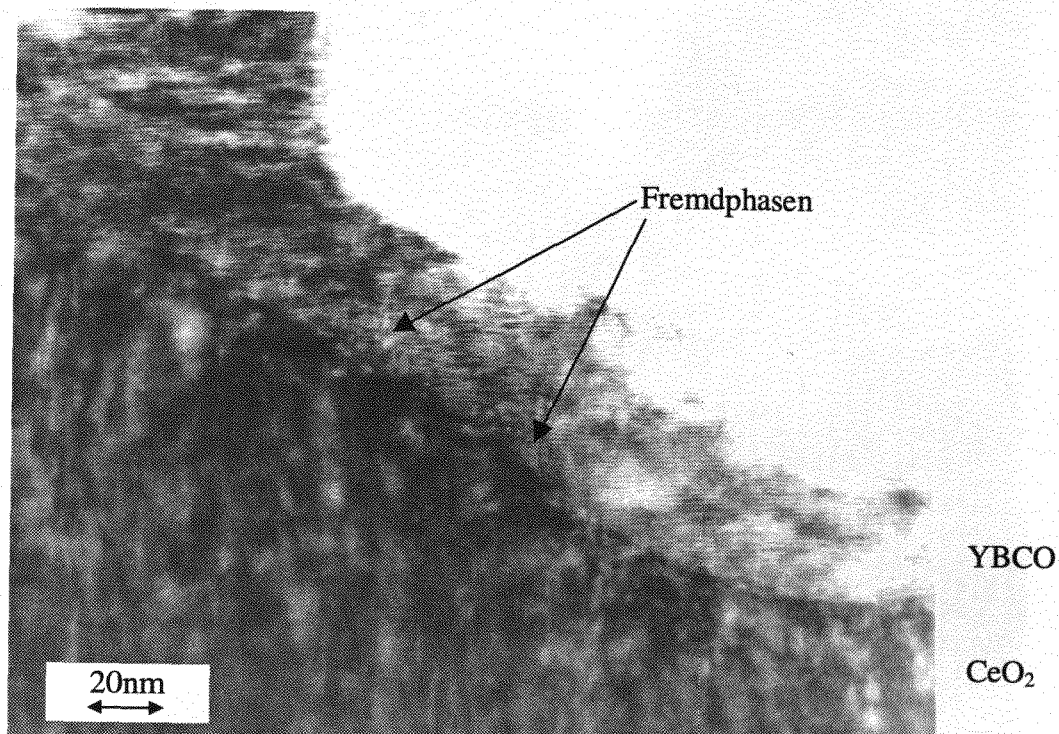


Abb. 4.18: TEM-Aufnahme eines YBCO-Filmes auf einer 40° steilen Stufe im CeO₂ ($h = 80\text{nm}$, $t = 80\text{nm}$). Der YBCO-Film wächst c -Achsen-orientiert über die CeO₂-Stufe hinweg. Dabei treten direkt an der Stufenoberfläche Fremdphasen auf.

Bei sehr steilen (80°-90°) Stufen (Abb. 4.19) wächst der YBCO-Film ebenfalls c Achsen-orientiert über den Bereich der Stufe hinweg, es entsteht keine definierte Korngrenze an der Stufe. Hierfür gibt es zwei mögliche Erklärungen. Entweder wächst der Film auf der Flanke a -Achsen-orientiert auf, was einer c -Achsen-Orientierung relativ zur Substratoberfläche entspricht, oder an der Stufe wächst kein Film auf. Für die erste Möglichkeit spricht, daß die Stufenflanke der (110)-Ebene des CeO₂ entspricht und a -Achsen-orientiertes Wachstum von YBCO durchaus auf (110)-orientiertem CeO₂ beobachtet wird (s. z.B. Ref. [Luo91]). Die zweite Möglichkeit könnte durch einen zu kleinen Materialfluß zur Flanke aufgrund der großen Stufensteilheit bedingt sein. Dies kann eventuell durch eine gerichtete Abscheidung auf entsprechend verkippt montierte Substrate behoben werden. Für diese Möglichkeit spricht die Morphologie des YBCO-Films an der Stufe.

Es bilden sich somit bei flachen und steilen Stufen keine Korngrenzen aus. Dieses wird durch elektrische Messungen bestätigt. Sie zeigten für diese Kontakte eindeutiges Flux-Flow- und kein RSJ-ähnliches Verhalten.

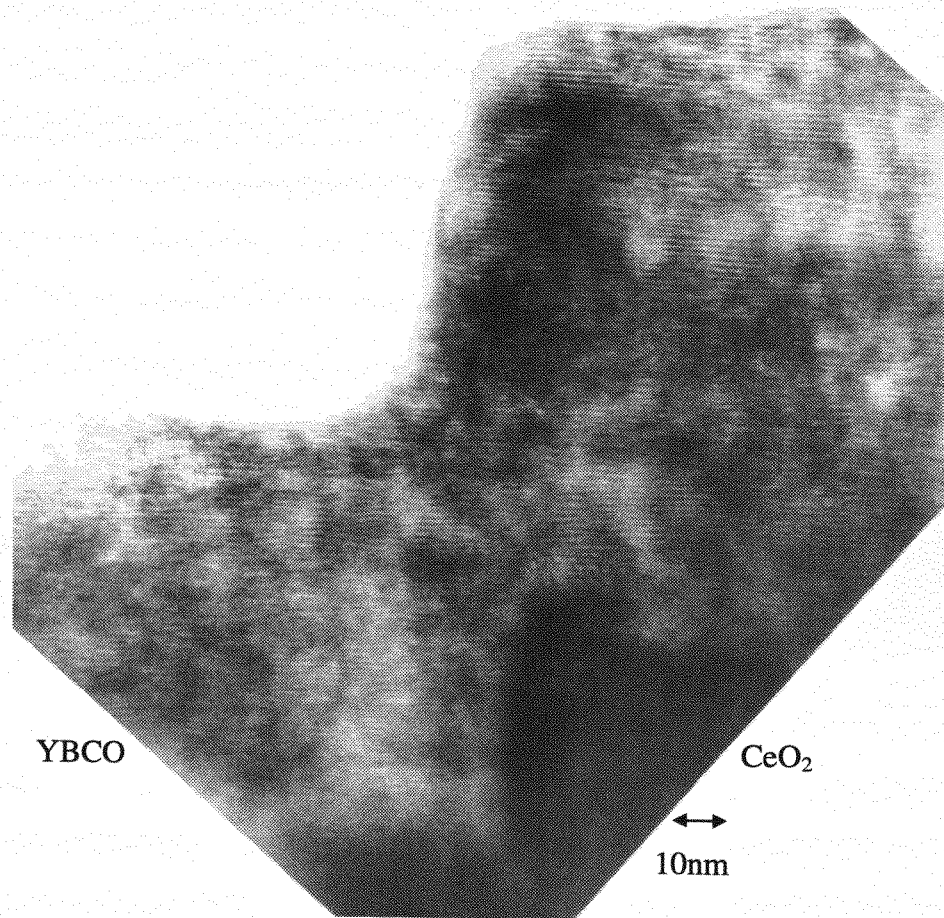


Abb. 4.19: TEM-Aufnahme eines c-Achsen-orientierten YBCO-Filmes auf einer 85° steilen Stufe im CeO₂ ($h = 50\text{nm}$, $t = 160\text{ nm}$). Der YBCO-Film wächst c-Achsen-orientiert über die Stufe hinweg.

Anders stellen sich Wachstum und Verhalten von YBCO auf Stufen im CeO₂ mit einem Stufenwinkel von $\alpha = 50\text{-}70^\circ$ dar. So ergaben TEM-Aufnahmen von YBCO auf 60°-Stufen folgendes Bild (Abb. 4.20). Wie in den anderen Fällen liegt in den planaren Bereichen neben der Stufe reines c-Achsen-Wachstum vor. An der Stufenflanke wächst der Film weder c- noch a-Achsen-orientiert zum Substrat auf. Vielmehr zeigen Beugungsaufnahmen an den TEM-Proben eine Verkipfung des Filmes von 60° gegenüber dem YBCO-Film neben der Stufe, d.h. der Film scheint mit seiner c-Achse normal zur Stufenflankenoberfläche aufzuwachsen.

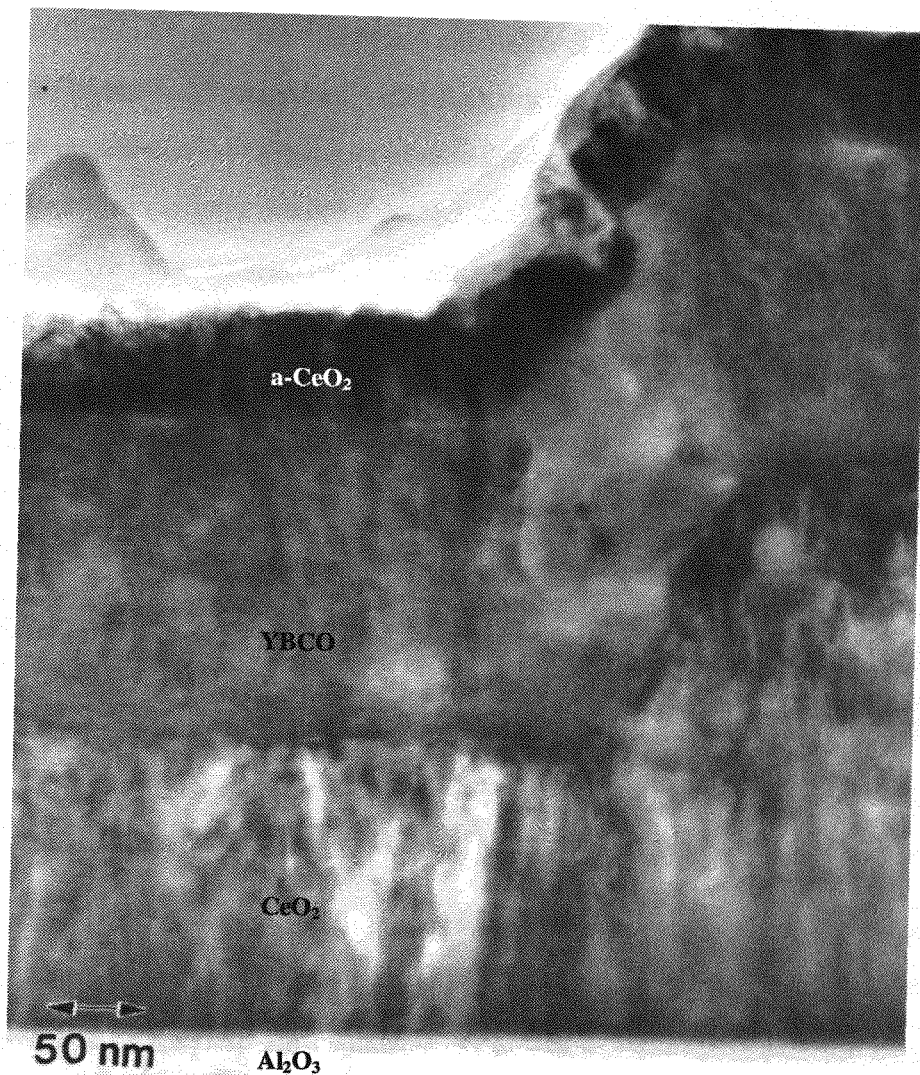


Abb. 4.20: TEM-Aufnahme einer 60°- steilen Stufe ($h = 150\text{nm}$) im CeO_2 . Die darauf gewachsene 160nm dicke YBCO-Schicht wurde mit einer CeO_2 -Schicht abgedeckt, um Schädigung des Filmes durch die TEM-Präparation (Ionen Beschuß) zu minimieren.

Dieses selten beobachtete Wachstum kann mit Hilfe des Netzebenenmodelles erklärt werden (s. Kap. 4.1.3.1). Da bei einem Winkel von $\alpha = 55^\circ$ die Stufenflankenoberfläche der (111)-Ebene des CeO_2 entspricht, wächst YBCO mit der (001)-Orientierung parallel zur Stufennormalen auf. Dabei können drei unterschiedliche um jeweils 60° verdrehte in-plane Orientierungen auftreten (s. Abb. 4.10). Bestätigt wird dieses durch Beugungsbilder an den TEM-Querschnittsaufnahmen des YBCO an der Stufenflanke. Diese zeigen zwei unterschiedliche Kristallorientierungen. Teilweise entsprechen die Beugungsmuster Gittern mit Gitterabständen ähnlich der a- bzw.

b-Achse des YBCO (gemessen wurde $3,9\text{\AA}$) in einer Richtung und der c-Achse (gemessen wurde $11,8\text{\AA}$) senkrecht dazu. In diesem Fall scheint das YBCO auf der Stufe um 60° verkippt, aber nicht in-plane verdreht zum YBCO neben der Stufe aufzuwachsen. Teilweise ergeben sich aber auch Gitterabstände von ungefähr 7\AA und $11,8\text{\AA}$. Dieses kann durch eine zusätzliche Verdrehung um $\gamma = 60^\circ$ (bzw. 120°) in der Stufenebene um die c-Achse erklärt werden. So wird bei einer Verdrehung um 63° (bzw. 117°) die Beugungsebene, die senkrecht zur Stufenachse liegt, durch die Richtungen $[001]$ und $[210]$ mit Gitterparametern von $11,8\text{\AA}$ bzw. $8,6\text{\AA}$ aufgespannt, bei einer Verdrehung um 56° (bzw. 124°) durch die Richtungen $[001]$ und $[320]$ mit Gitterparametern von $11,8\text{\AA}$ bzw. $13,8\text{\AA} = 2 \times 6,9\text{\AA}$ (Abb. 4.21).

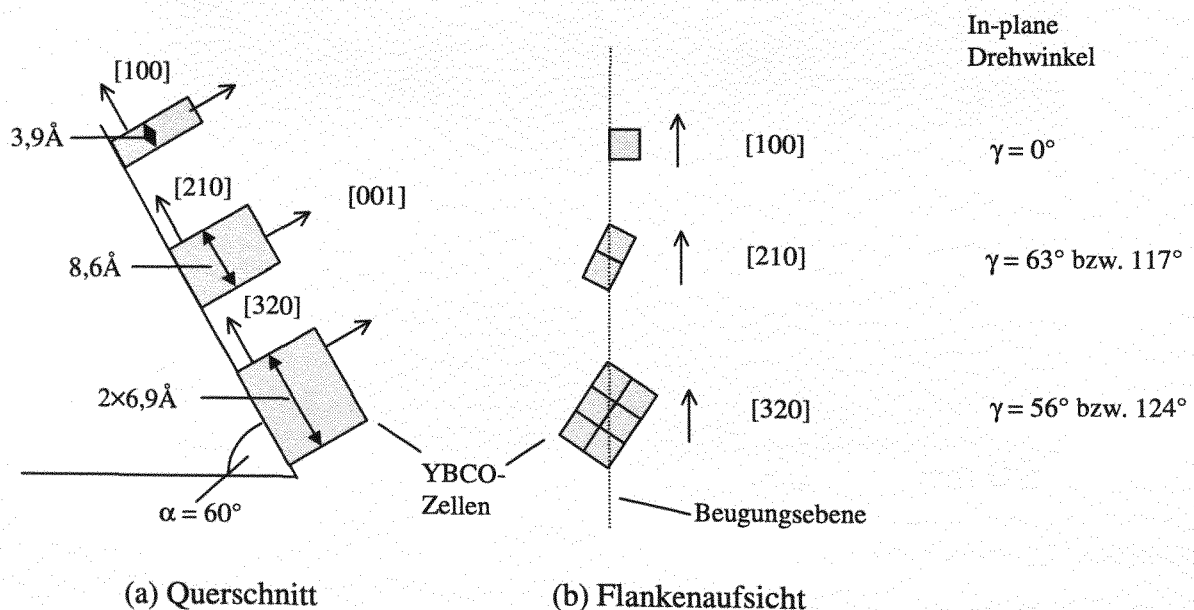


Abb. 4.21: Skizzierung von möglichen Beugungsebenen der unterschiedlichen in-plane Orientierungen von c-Achsen-orientiertem YBCO auf einer Stufe ($\alpha = 60^\circ$) in CeO_2 . (Die um $\gamma \approx 60^\circ$ gedrehte Orientierung und die um $\gamma \approx 120^\circ$ gedrehte Orientierung besitzen die gleichen Beugungsbilder.) (a) Querschnitt der Stufenflanke und Aufsicht der Beugungsebene; (b) Aufsicht auf die Flanke, die gestrichelte Linie entspricht der Beugungsebene der Querschnitts-TEM-Aufnahmen.

Neben dem Stufenwinkel ist das Verhältnis Filmdicke zu Stufenhöhe t/h ein entscheidender Parameter für das Verhalten der Kontakte. Aus den elektrischen Messungen (s. Kap. 4.2.2) ergibt sich als optimales Verhältnis $t/h = 3/2$ für die gesputterten Kontakte auf 60° - CeO_2 -Stufen

(s. Abb. 4.9a). Dieses ist deutlich höher als der Wert von $t/h = 1/2 - 2/3$ (s. z.B. [Vau95]) für gesputterte YBCO-Stufenkontakte auf steilen Stufen in SrTiO_3 oder LaAlO_3 . Ist das Verhältnis wesentlich kleiner, $t/h < 1$, tritt ein supraleitender Strom erst bei Temperaturen auf, die viel tiefer sind als die Sprungtemperatur des YBCO-Filmes von ca. 90K. Dieses läßt sich damit erklären, daß der Film an der Kante stark geschädigt ist und unter Spannung steht. Dies führt nicht nur zur T_c -Erniedrigung, sondern auch zu Alterungseffekten und teilweise bzw. vollständigem mechanischen Abreißen an der oberen Kante. Ist das Verhältnis dagegen zu groß, $t/h > 2$, tritt ein Überwachsen des Filmes an der oberen Kante der Stufe auf, so daß die Korngrenzen durch den darüber epitaktisch c-orientiert gewachsenen Film kurzgeschlossen sind [Her93]. Da der Strom dann hauptsächlich über den supraleitenden Shunt fließt, zeigen die Kennlinien Flux-Flow-Verhalten mit sehr hohen I_c -Werten (s. Kap. 4.2).

4.1.4 Zusammenfassung

In diesem Abschnitt wurden grundsätzliche Untersuchungen der präparativen Aufgaben bei der großflächigen Herstellung von Stufenkontakten auf geeigneten Substraten (hier: Saphir und LaAlO_3) vorgestellt. Kriterien für Auswahl des Trägermaterials waren u.a. Eignung für Waferskalierung, Großflächigkeit, Maßhaltigkeit und Eignung für hf-Anwendungen. Dazu wurde das Wachstum von YBCO-Filmen an Stufen bei unterschiedlichen Depositionsverfahren (Sputtern und PLD) verglichen. Bei gleichem Stufenwinkel (hier 60°) entstehen sowohl mittels Sputterdeposition als auch mittels Laserablation Korngrenzen im YBCO. Jedoch bilden sich im Falle der Kathodenzerstäubung kleine YBCO-Segmente unterschiedlicher Orientierung sowie zusätzliche Phasen an der Stufe. Das unterschiedliche Wachstum kann dadurch erklärt werden, daß Sputtern ein kontinuierlicher Beschichtungsprozeß ist, während im Falle der PLD-Abscheidung ein gepulster Prozeß vorliegt. Der morphologische Unterschied scheint dabei keinen Einfluß auf die Qualität der Kontakte zu haben. So zeigt die elektrische Charakterisierung der Kontakte in Kap. 4.2 und der SQUIDs in Kap. 4.3, daß die gesputterten Kontakte durchaus vergleichbare, bzgl. des Rauschens und der Streuung teilweise sogar bessere Eigenschaften besitzen als laserablatierte Kontakte auf gleichhergestellten Stufen.

Im Rahmen der Kontaktherstellung auf Saphir wurden unterschiedliche Pufferschichtsysteme untersucht. Als bestes System stellte sich jedoch eine Einzelpufferschicht aus CeO_2 heraus, da sie insbesondere einfacher herzustellen ist und eine bessere Oberflächenmorphologie aufweist im

Gegensatz zu Mehrfachschichten. So konnten auf Saphirsubstraten CeO_2/YBCO -Schichtpakete von bis zu 500nm rißfrei abgeschieden werden (Der Literaturwert der kritischen Schichtdicke liegt für diese System bei ca. 250-350nm.). Weiterhin wurden unterschiedliche Stufenwinkel sowohl in Saphir als auch in CeO_2 getestet. Das Wachstum des YBCO auf Saphirstufen und CeO_2 -Stufen wurde anhand von TEM-Aufnahmen und mit Hilfe des Netzebenen- und Treppenstufenmodell diskutiert. Auf Saphirstufen konnte aufgrund der hexagonalen Kristallstruktur des Saphirs nur polykristallines CeO_2 und YBCO abgeschieden werden. Auf CeO_2 -Stufen mit Winkeln kleiner als ca. 45° und größer als ca. 75° wächst der YBCO-Film ungestört c-Achsen-orientiert auf. Es formen sich somit keine Korngrenzen an der Stufe. Dagegen wächst der YBCO-Film bei einem Stufenwinkel von ca. 60° in Übereinstimmung mit dem Netzebenenmodell mit der c-Achse normal zur Stufenflanke allerdings mit unterschiedlichen in-plane Orientierungen auf. Dabei bilden sich im oberen und unteren Stufenbereich Korngrenzen. Bei derartigen Stufenkontakte mit ca. 60° -Stufen in CeO_2 stellt sich optimales, d.h. RSJ-ähnliches Verhalten, bei einem Verhältnis YBCO-Filmdicke zu Stufenhöhe von 3/2 ein (s. Kap. 4.2).

Dieses Verhalten wird durch die Literatur bestätigt. In den wenigen Quellen, in denen ähnliche Materialsysteme verwandt wurden, werden vergleichbare Angaben zum optimalen Stufenwinkel gemacht. Optimale Stufenwinkel, bei denen RSJ-ähnliches Verhalten auf die Existenz von Korngrenzen an der Stufe hinweist, sind: $50\text{-}70^\circ$ für Stufen in CeO_2 auf Saphir [Ovs95] und $60\text{-}65^\circ$ für Stufen in Saphir und Stufen in YSZ auf Saphir [Ada95].

Allerdings findet man ebenso Hinweise auf eine geringe zeitliche Stabilität der elektrischen Eigenschaften der Kontakte auf Saphir (z.B. Ref. [Ovs98]). Dieses steht im Gegensatz zu den Messungen, die im Rahmen dieser Arbeit durchgeführt wurden, so trat z.B. bei den rf-SQUIDs auf Saphir während des gesamten Meßzeitraumes von mehreren Monaten keine Degradation der elektrischen Eigenschaften auf.

Insgesamt zeigte sich, daß das Kontaktverhalten der Kontakte auf Saphir empfindlich auf Variationen der Stufensteilheit sowie des Verhältnisses der Schichtdicke zu Stufenhöhe reagiert. Kleine Abweichungen resultieren in korngrenzenfreie oder durch Mikrokristallite dominierte Kontakte. Daraus folgt ein Übergang von RSJ-ähnlichem zu Flux-Flow-Verhalten, wie in den folgenden Abschnitten gezeigt wird. Die Einstellung des jeweiligen Verhaltens erfolgte aufgrund der Prozeßhomogenität immer für alle Kontakte eines 2“ Wafers gemeinsam.

Die sehr stabilen Kontakte auf Saphir mit Winkeln von $\alpha = 40^\circ$ oder $\alpha = 60^\circ$ und $t/h = 2/1$ sind im Weiteren für die Untersuchungen der FFI verwandt worden. Saphir-Kontakte mit $\alpha = 60^\circ$ und $t/h = 3/2$ sind für die Untersuchung des RSJ-Verhaltens an Einzelkontakten und die Herstellung von SQUIDs eingesetzt worden.

Weiterhin wurden auf 2"-LaAlO₃-Substraten Stufenkontakte mit Stufenwinkeln von $\alpha \approx 70^\circ$ und mit einem Verhältnis Filmdicke zu Stufenhöhe von $t/h = 2/3$ präpariert. Durch Untersuchungen von rf-SQUIDs und planaren Gradiometern wurde bestätigt, daß auf der Basis der Kathodenzerstäubung die in dieser Arbeit entwickelte reproduzierbare Herstellung von Stufenkontakten auf 2"-Wafern mit einer geringen Streuung von $\sigma = 12\%$ möglich ist (s. Kap. 4.3).

4.2 Untersuchung des elektrischen Kontaktverhaltens

In diesem Teil soll nun das elektrische und insbesondere supraleitende Verhalten der großflächig (2Zoll) präparierten YBCO-Stufenkontakte auf Saphir und als Vergleich auf Standardsubstraten (LaAlO_3 bzw. SrTiO_3) diskutiert werden. Wie schon im präparativen Teil dieses Kapitels (Abschn. 4.1) deutlich wurde, muß zwischen Stufenkontakten mit bzw. ohne Korngrenzen und damit, wie sich zeigen wird, zwischen Flux-Flow- und Josephson-Verhalten unterschieden werden. Daher soll im ersten Teil dieses Abschnittes auf das Flux-Flow-Verhalten der sehr stabilen Stufenkontakte ohne Korngrenze an der Stufe, die auf dem Prinzip der Flux-Flow-Instabilität beruhen, eingegangen werden. Im zweiten Teil sollen dann die wesentlich empfindlicheren Josephson-Kontakte auf Saphir (YBCO-Stufenkontakte mit Korngrenze an der Stufe) besprochen werden.

Meßelektronik und Meßverfahren

Die temperatur- und magnetfeldabhängigen Untersuchungen der Kontakteigenschaften wurden in einem Flow-Kryostaten durchgeführt, in dem mit Hilfe eines Temperatur-Reglers (Lakeshore 330) die Temperatur bis zu 4,2°K stabil eingestellt werden kann, und sich ein externes Magnetfeld bis zu $\pm 1\text{T}$ durch einen normalleitenden Magneten (B-E15, Firma Bruker) erzeugen läßt. Als Temperatursensor diente eine magnetfeldunabhängige GaAlAs-Diode. Die Kontaktierung der Proben geschah durch Ultraschallbonden mit 25µm dickem Aluminiumdraht. Da Josephson-Kontakte sehr empfindlich auf statische Aufladungen reagieren können, wurden sie vor und nach den Messungen kurzgeschlossen. Alle resistiven Untersuchungen wurden mittels Standard-4-Punkt-Methode durchgeführt. Die Strom-Spannungs-Kennlinien wurden zunächst mit einem Oszilloskop (Tektronix 2245A bzw. Tektronix TDS 420A) aufgenommen, um einen Überblick über die Form der Kurve und die Größe des kritischen Stromes zu bekommen. Der sinusförmig oszillierende ($f = 1 - 10\text{Hz}$) Strom wurde von einer im Institut gebauten Stromquelle erzeugt. Die am Kontakt abfallende Spannung wurde über einen Differenzenverstärker mit dem Oszilloskop ausgelesen und ggf. gespeichert. Die nachfolgende exakte Datenaufnahme erfolgte PC-gesteuert. Die Programme wurden mit dem Programmpaket ASYST erstellt [Wör96]. Der Strom wurde dabei von einer Stromquelle (Keithley 220) diskret

variiert und zusammen mit der dazugehörenden Spannung (Nanovoltmeter Keithley 182), Temperatur und magnetischen Feldstärke gemessen und vom Rechner gespeichert.

4.2.1 Kontakte auf der Basis von Flux-Flow-Instabilitäten

Stufenkontakte auf CeO_2 -Stufen mit kleinem ($\alpha < 45^\circ$) (s. Abb. 4.22) oder steilem ($\alpha > 75^\circ$) Stufenwinkel zeigten oberhalb des kritischen Stromes Flux-Flow-Verhalten bis zu einer kritischen Spannung, bei der ein stark nichtlineares Verhalten aufgrund einer Flux-Flow-Instabilität (FFI, s. Kap. 2.2) in der IU-Kennlinie zu beobachten war.

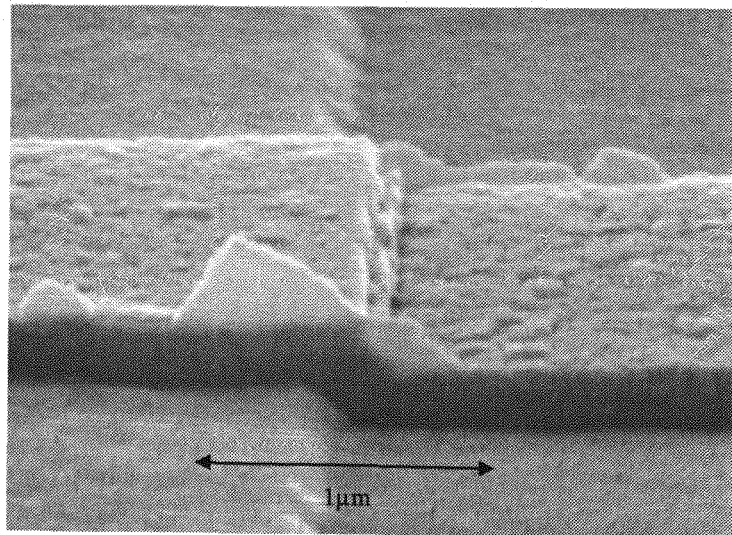


Abb. 4.22: SEM-Aufnahme eines Stufenkontaktes auf Saphir über eine 40° Stufe im CeO_2 . An den Seiten des Steges sind in diesem Falle Lackreste zu sehen, die die elektrischen Eigenschaften der Kontakte nicht beeinflussen.

Diese Nichtlinearität kann ggf. in Mikrobrücken in ähnlicher Funktion wie die Nichtlinearität eines Josephson-Kontaktes für aktive Bauelemente eingesetzt werden (s. Kap. 4.3). Hierbei spielt insbesondere die exzellente Wärmeleitung des Saphirs eine vorteilhafte Rolle, die zu einer schnellen thermischen Relaxation des Kontaktes führt. Im Folgenden soll daher der Mechanismus der FFI an YBCO-Mikrobrücken auf Saphir, der Einfluß der Stufe auf dieses Verhalten und die Rolle möglicher lokaler Temperaturerhöhungen durch die Dissipation im Instabilitätsbereich untersucht werden. Dazu soll mit Hilfe von Strom-Spannungskennlinien die auftretende Nichtlinearität charakterisiert werden. Anhand der Werte von charakteristischen

Parametern, wie kritischer Spannung und differentieller Widerstand, soll abgeschätzt werden, ob die gemessenen Werte mit denen für Flux-Flow-Instabilitäten theoretisch zu erwartenden übereinstimmen und ob eventuell auch andere Effekte (Josephson-Effekt) die beobachtete Nichtlinearität verursachen können.

Zunächst soll das Verhalten der Proben in verschiedenen Spannungsbereichen anhand der IU-Kurve (Abb. 4.23) charakterisiert werden. Bei Überschreiten des kritischen Stromes I_c setzt Dissipation ein. Der damit verbundene Spannungsabfall beruht auf dem Fließen der Vortices (Flux-Flow), es bilden bzw. befinden sich aufgrund des Eigenfeldes oder des Hintergrundfeldes Vortices im Supraleiter, die durch den Transportstrom getrieben die Mikrobrücke durchlaufen. Die IU-Kurve ist nach oben gekrümmt, d.h. $d^2U/d^2I > 0$. Im Supraleiter kommt es nun offenbar zu einer FFI (eine detailliertere Diskussion folgt im Anschluß an diesen Abschnitt), wenn die kritische Flußfadengeschwindigkeit v^* und damit eine kritische Spannung

$$U^* = v^* B l, \quad (4.1)$$

überschritten werden (s. Kap. 2.2). Hierbei sind B die durch Eigenfeld und äußeres Feld erzeugten magnetischen Induktionen im Bereich des Steges, in dem die kritische Stromdichte I^* eingepreßt ist. Die FFI ist in der IU-Kennlinie durch einen sprunghaften Anstieg der Spannung gekennzeichnet. Das Vortexgitter des Supraleiters in der Shubnikov-Phase befindet sich in einem gestörten instabilen Zustand, Vortices zerstören und bilden sich aufgrund der hohen Vortexgeschwindigkeit. Bei den hohen Spannungen spielt nun die Joule'sche Erwärmung eine Rolle. Die dissipierte Leistung ist so groß, daß sich der Supraleiter aufheizt. Dieses kann so weit gehen, daß der Supraleiter teilweise oder im gesamten Bereich der Mikrobrücke normalleitend wird. Der Widerstand nähert sich dann dem normalleitenden Widerstand R_n an. Dies wird aus der Steilheit dU/dI der IU-Kurve ersichtlich, der differentielle Widerstand liegt im Bereich des normalleitenden Widerstands bei 100K.

Beim Zurückfahren der Spannung kühlt sich die Probe wieder soweit ab, daß sie supraleitend wird, es erfolgt der Sprung zurück in den Flux-Flow-Zustand. An dieser Stelle tritt nun der Vorteil des Saphirs zu Tage. Aufgrund seiner exzellenten Wärmeleitung erfolgt die Abkühlung nahezu instantan, so daß Bauelemente mit großer Dynamik auf diesem Träger mit FFI arbeiten können. Nichtsdestotrotz hängt der Sprung zurück in den Flux-Flow-Bereich u.a. von Temperatur und äußerem Magnetfeld ab. Es traten bei tieferen Temperaturen Hysteresen im Bereich von U^* auf, deren Größe bis einige kHz jedoch frequenzunabhängig waren. (Es können nur eindeutig Aussagen bis zu diesen Frequenzen getroffen werden, da bei höheren Frequenzen

meßtechnisch bedingte Phasenverschiebungen die Bestimmung der IU-Kennlinien unmöglich machten.) Insgesamt läßt sich also das elektronische Verhalten der Stege ohne Korngrenzen in vier unterschiedliche Spannungsbereiche einordnen (Abb. 4.23):

- (i) $U = 0$: Der Strom durch die Mikrobrücke ist kleiner als der kritische Strom I_c , d.h. an der Mikrobrücke fällt keine Spannung ab, vorhandene Vortices bleiben verankert (thermische Aktivierung von Vortexbewegung bleibt hier unberücksichtigt).
- (ii) $0 < U < U^*$: Flux-Flow-Bereich, hier wird der Spannungsabfall durch Vortexbewegung hervorgerufen.
- (iii) $U^* < U < U^+$: FFI, ein sprunghafter, bei tieferen Temperaturen hysteretischer Übergang zwischen Flux-Flow und instabilem Zustand findet statt.
- (iv) $U^+ < U$: Linearer Bereich, die Mikrobrücke wird aufgrund der dissipierten Leistung normalleitend.

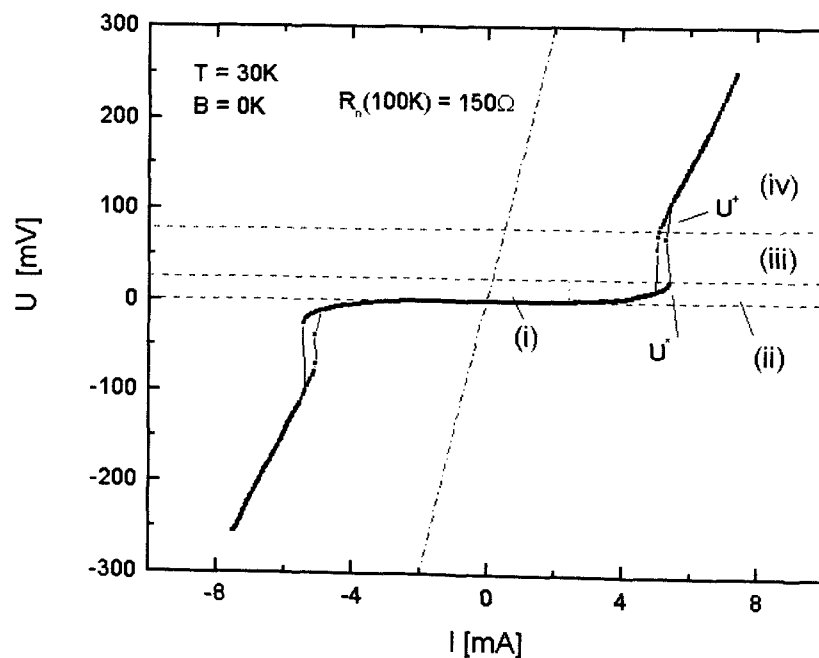


Abb. 4.23: IU-Kennlinie eines Stufenkontaktes ($\alpha = 40^\circ$) ohne Korngrenze auf Saphir bei $T = 30K$ und $B = 0T$, bei der eine Flux-Flow-Instabilität auftritt. In der Grafik sind die im Text beschriebenen unterschiedlichen Spannungsbereiche (i) $U = 0$, (ii) $0 < U < U^*$, (iii) $U^* < U < U^+$ und (iv) $U^+ < U$ gekennzeichnet. U^* gibt die kritische Spannung an, bei der die FFI einsetzt, U^+ ist die charakteristische Spannung oberhalb des instabilen Bereiches. Der differentielle Widerstand der Brücken oberhalb U^+ liegt mit $R^+ = 75\Omega$ im Bereich des normalleitenden Widerstand bei $100K$ $R_n(100K) = 150\Omega$.

Obwohl die physikalische Erklärung der IU-Kennlinien der FFI-Kontakte gänzlich anders ist, zeigten sie dennoch qualitativ ein dem Josephson-Kontakt sehr ähnliches Verhalten. Jedoch waren die charakteristischen Parameter I^* und R^+ nicht mit den entsprechenden Parametern von Josephson-Kontakten I_c und R_n vergleichbar. Sie lagen für diesen Kontakttyp weit über den für Josephson-Kontakte theoretisch erreichbaren Werten. Im Folgenden sollen die Einflüsse unterschiedlicher Parameter (z.B. äußeres Magnetfeld) auf das Verhalten der augenscheinlichen FFI untersucht werden, um somit sowohl Josephson-Effekte auch als rein thermische Effekte als Ursache für das Verhalten dieser Kontakte ausschließen zu können.

Zuerst soll der Einfluß der Stufe auf das elektronische Verhalten diskutiert werden. Die strukturellen Untersuchungen in Abschn. 4.1 zeigten, daß in YBCO-Filmen auf CeO_2 -Stufen mit zu kleinen ($\alpha < 50^\circ$) oder zu steilen ($\alpha > 70^\circ$) Stufenwinkeln keine Korngrenzen entstehen, sondern die YBCO-Schicht auf dem ganzen Substrat c-Achsen-orientiert aufwächst. Somit sind die einzigen beschränkenden Faktoren für den Strom, daß er (i) an der Stufe parallel zur c-Achse und (ii) durch eine Verengung des Leiterquerschnittes fließt. In Abb. 4.24 ist eine vergleichende IU-Kennlinie für eine YBCO-Mikrobrücke gleicher Abmessung auf Saphir ohne Stufe wiedergegeben.

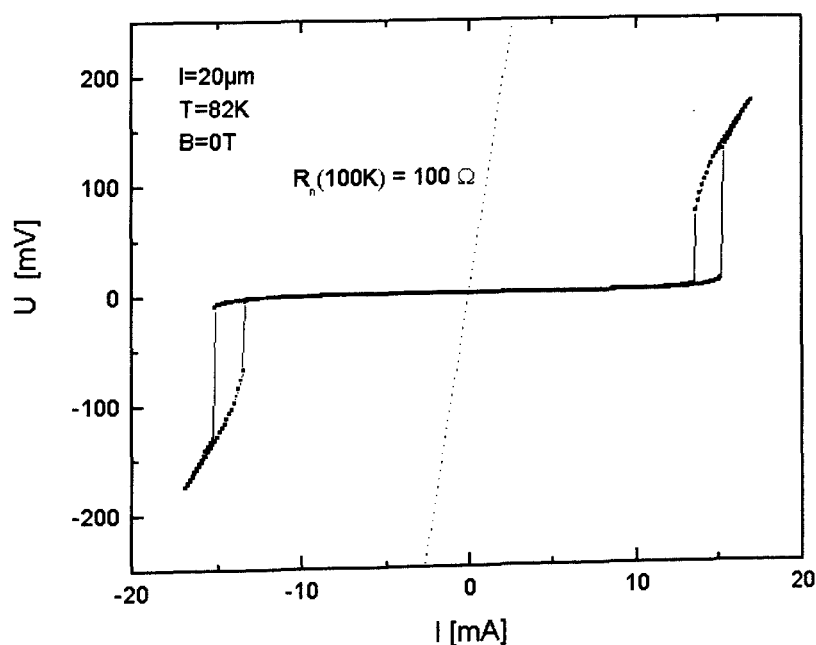


Abb. 4.24: IU-Kennlinie einer $20\mu\text{m}$ langen Mikrobrücke ohne Stufe auf Saphir bei $T = 82\text{K}$ und $B = 0\text{T}$, bei der Flux-Flow und Flux-Flow-Instabilität auftreten. Der differentielle Widerstand oberhalb der Instabilität liegt mit $R^+ = 25\Omega$ in der Größenordnung des normalleitenden Widerstands $R_n(100\text{K}) = 100\Omega$.

Die Kurven von Mikrobrücken ohne Stufe und Mikrostufen mit Stufen (ohne Korngrenze) (s. Abb. 4.23) ähneln sich sowohl im Verlauf als auch in ihren typischen charakteristischen Werten mit $U^* \approx 5\text{-}20\text{mV}$, $U^+ \approx 0,1\text{-}1\text{V}$, $I^* \approx 5\text{-}15\text{mA}$ und $R^+ \approx 25\text{-}100\Omega$. Es tritt also auch an einfachen Mikrobrücken (ohne Stufe) eine Nichtlinearität auf. Somit scheint die Stufe für die Nichtlinearität nicht notwendig zu sein, vielmehr reicht die Einengung (Mikrobrücke) aus.

Thermische Effekte

Ein nichtlineares Strom-Widerstands-Verhalten kann letztlich auch aufgrund von Temperatureffekten bei Supraleitern in der Shubnikov-Phase auftreten (s. z.B. [Bec94]). So führt die Bewegung der Vortices z.B. aufgrund eines aufgeprägten Stroms bei kleineren als den kritischen Vortexgeschwindigkeiten zur Dissipation von elektrischer Energie. Dies kann bevorzugt an einer Schwachstelle des Supraleiters eine lokalen Erwärmung bis über T_c bewirken und würde zu sog. „Hot-Spots“ führen. Bei Verringerung der dissipierten Leistung wird der Bereich schließlich wieder supraleitend. Insgesamt ergibt sich ein nichtlineares hysteretisches Verhalten. Im Folgenden soll abgeschätzt werden, ob allein Temperatureffekte (ohne vorherige FFI) Ursache für die beobachteten extremen Nichtlinearitäten sein können. Nichtlineares Verhalten trat bei den untersuchten Mikrobrücken bei Flächenleistungen von $P^*/w_l = 2,5\text{-}50 \cdot 10^5 \text{W/m}^2$ auf. Die resultierende Erwärmung der Mikrobrücke aufgrund dieser dissipierten Leistungen kann relativ einfach abgeschätzt werden. Aufgrund seiner guten Wärmeleitung von $\lambda_s = 900 \text{W/mK}$ [Tou70], der guten Ankopplung an den Kühlfinger und seiner großen Dimensionen im Vergleich zur Mikrobrücke kann der Saphirträger (s. Abb. 4.25) als Wärmebad mit konstanter Temperatur angenommen werden.

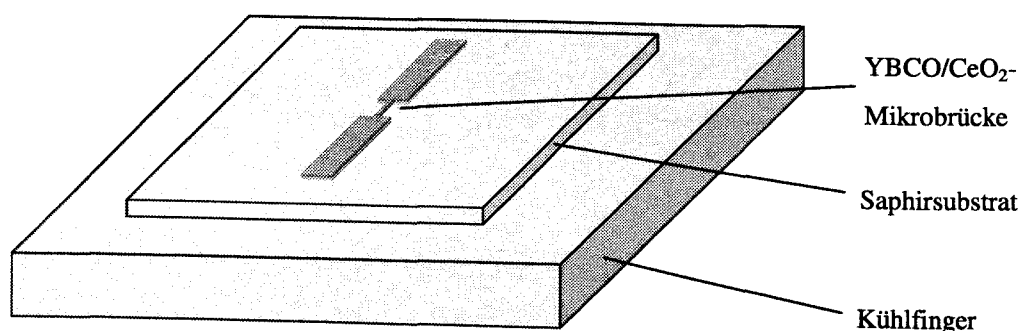


Abb. 4.25: Skizze der Anordnung von Mikrobrücke, Saphirsubstrat und Kühlfinger.

Diese Annahme gilt sicherlich nur bedingt für andere Trägermaterialien. So sind z.B. für LaAlO_3 -Substrate, bei denen die Wärmeleitung mit $\lambda_s = 10\text{W/mK}$ [Moe94] deutlich schlechter ist, Aufheizeffekte der dem Film zugewandten Substratoberseite beobachtet worden [Wos99].

Bei einem Strom I und einer Spannung U führt die resultierende Leistung $P=U \cdot I$ im YBCO-Film zu einer Erwärmung der supraleitenden Schicht im Bereich der Mikrobrücke um ΔT . Diese Temperaturdifferenz ΔT zwischen Substrat und YBCO-Film resultiert automatisch in einen Wärmeübertrag vom YBCO über den CeO_2 -Film zum Substrat; aufgrund der relativ guten Temperaturleitfähigkeit von YBCO ($\lambda_s = 2\text{W/mK}$ in c-Achsen-Richtung, [Gin]) und der bei lokaler Aufwärmung des Supraleiters auftretenden Stromumverteilung kann die Temperatur der YBCO-Brücke normal zur Oberfläche als konstant angesehen werden. Daher entscheidet die Wärmeleitung im CeO_2 über die Aufwärmung des YBCO-Films. Die Wärmeabfuhr aus dem YBCO ins Saphir pro Temperaturunterschied ΔT ist dann

$$\frac{dE}{dt} = \frac{\lambda_c A}{t_c} \Delta T \quad . \quad (4.2)$$

Mit der Wärmeleitfähigkeit des CeO_2 von $\lambda_c = 10\text{-}100\text{W/mK}$ [Sha94, Tou70], der Querschnittsfläche der Mikrobrücke $A = 4 \cdot 10^{-11}\text{m}^2$, durch die die Wärme transportiert wird, und einer maximalen Dicke der CeO_2 -Schicht $t_c = 300\text{nm}$, über die der Temperaturunterschied ΔT besteht, ergeben sich dann Werte von $dE/dt < (0,75\text{-}7,5)\Delta T \text{ mW/K}$. Mit einer maximalen Leistung von $P_{\text{max}}^* = 200\mu\text{W}$ ergibt sich dann eine mögliche Erwärmung der Mikrobrücke von $\Delta T < 0,15\text{K}$. Dies zeigt deutlich, daß thermische Effekte als alleinige Erklärung für das Einsetzen der starken Nichtlinearität ausgeschlossen werden müssen. Anders wäre dies sicherlich im Falle von z.B. LaAlO_3 als Trägermaterial, für das ein ähnlicher Ansatz Temperaturerhöhungen von bis zu $\Delta T = 250\text{K}$ voraussagt.

Kritische Spannung

Im Folgenden soll abgeschätzt werden, in welchem Spannungsbereich FFI an Mikrobrücken erwartet werden, und ob die an den korngrenzenfreien Kontakten gemessenen U^* -Werte mit diesen Werten übereinstimmen. Dazu wird zuerst das Regime $B > B^*$ betrachtet, in dem die kritische Geschwindigkeit v^* im Rahmen der LO-Theorie [Lar76] als magnetfeldunabhängig angesehen werden kann. Für YBCO-Filme werden Werte von $B^* \approx 0,5\text{T}$ berichtet, die kritische Geschwindigkeit ist dann $v^* \approx 10^2\text{-}10^3\text{m/s}$ für $B > B^*$ und 77K [Lah97]. Die FFI tritt bei einer

Spannung von $U^* = v^* B l$ (s. Abschn. 2.2) auf. Daraus ergibt sich dann ein elektrisches Feld von $U^*/l = 50\text{-}500\text{V/m}$. Damit sollte an einer Mikrobrücke der Länge $l = 20\mu\text{m}$ im Augenblick des Einsetzens der Instabilität eine Spannung von $U^* = 1\text{-}10\text{mV}$ abfallen. Hierbei ist zu beachten, daß die Länge l durch den Bereich des Steges definiert wird, in dem der Strom dem kritischen Strom I^* entspricht. Für die Kontakte ohne Korngrenzen ist dies der gesamte Bereich um die Stufe, der lithographisch zur Verengung strukturiert wurde. Die Maße des Steges sind, wenn nicht anders angegeben, definiert durch die Stegbreite $w = 2\mu\text{m}$, die Steglänge $l = 20\mu\text{m}$ und die Filmdicke $t = 200\text{nm}$.

Magnetische Flußdichten $B > 0,5\text{ T}$ liegen jedoch nur dann vor, wenn ein äußeres Feld angelegt wird. Das Feld, das eine Mikrobrücke im Kryostaten ohne angelegtes Feld erfährt, ist wesentlich kleiner. Es setzt sich aus dem Erdfeld ($B \approx 0,04\text{mT}$), gegebenenfalls Streufeldern und dem durch den eingepprägten Strom erzeugten Eigenfeld zusammen. Das resultierende Feld kann des Weiteren aufgrund von Feldverdrängung und -fokussierung durch den Supraleiter verstärkt werden. Aus einfachen Überlegungen lassen sich für die gewählte Struktur der Mikrobrücke und für typische Ströme bei Erreichen der Instabilität Werte für das Eigenfeld von $B \approx 1\text{mT}$ ableiten. Bei derart kleinen Feldern ist die kritische Geschwindigkeit feldabhängig. Sie ist dann gegeben durch

$$v_{B < B^*}^* = v_{B > B^*}^* \cdot \sqrt{B^*/B}, \quad (4.3)$$

und nimmt für derart kleine Felder von $B \approx 1\text{mT}$ Werte von $v^* \approx (2\text{-}20) \cdot 10^3\text{m/s}$ an. Mit $U^*/l = 2\text{-}20\text{V/m}$ ergeben sich kritische Spannungen von $U^* = 0,04\text{-}0,4\text{mV}$.

Vergleicht man nun die theoretisch ermittelten Werte für die kritische Spannung mit den gemessenen Werten, so ist zu berücksichtigen, daß auch ein Teil der gemessenen Spannung an den Zuleitungen (mit einer Breite $W = 200\mu\text{m}$ und einer Länge $L = 4\text{mm}$) zur Mikrobrücke abfällt. Aufgrund der gewählten Geometrie beträgt der gesamte Spannungsabfall über die Probe $U_{\text{eff}}^* \approx 2 \cdot U^*$ bei $20\mu\text{m}$ langen Mikrobrücken.

In Abb. 4.26 sind experimentell bestimmte kritische Spannungen U^* und entsprechende kritische Geschwindigkeiten $v^* = U^*/B l$ in Abhängigkeit vom Magnetfeld aufgetragen. Bei großen Feldern stimmen die experimentellen Werte von ungefähr $8\text{-}11\text{mV}$ und deren Zunahme mit dem Feld durchaus mit den erwarteten Werten von $U_{B > B^*}^* = 1\text{-}10\text{mV}$ der Theorie überein. Damit entsprechen auch die kritischen Geschwindigkeiten in diesem Feldbereich mit ungefähr $v^* = 10^3\text{m/s}$ den Literaturwerten für YBCO-Filme [Lahl97, Doe95]. Die Magnetfeldabhängigkeit

von v^* entspricht in diesem Fall der erwarteten $1/\sqrt{B}$ - Abhängigkeit. Ohne angelegtes Feld liegen jedoch die gemessenen kritischen Spannungen bei ca. 4,5mV und damit die kritischen Geschwindigkeiten bei ca. 10^5 m/s. Beide Werte sind ungefähr eine Größenordnung größer als die erwarteten Werte von $U^* = 0,04\text{-}0,4\text{mV}$ bzw. $v^* = (2\text{-}20)\cdot 10^3\text{m/s}$. Dies kann u.a. mit der groben Abschätzung des Eigenfeldes oder mit der Ausbildung von Vortex-Antivortex-Paaren. Insgesamt besteht eine gute Übereinstimmung zwischen den experimentellen und den für eine FFI erwarteten Werten.

Dagegen zeigt ein Vergleich mit experimentellen und theoretischen Werten für Josephson-Kontakte eine große Diskrepanz. So ist für YBCO-Josephson-Kontakte die charakteristische Spannung bei 77K üblicherweise $U_c (= I_c R_n) < 300\mu\text{V}$, während die Gap-Spannung von YBCO $\Delta/e \approx 15\text{-}30\text{mV}$ beträgt [Gro93]. Der charakteristischen Spannung U_c entspricht die charakteristische Spannung U^+ oberhalb der Instabilität. Für diese liefern die Messungen an den Mikrobrücken bei Temperaturen um 77K Werte von $U^+ = 0,1$ bis 1V (s. Abb. 4.23, Abb. 4.24, Abb. 4.26). Die experimentellen Werte sind also um Größenordnungen größer als die für Josephson-Kontakte in der Literatur berichteten charakteristische Spannungen.

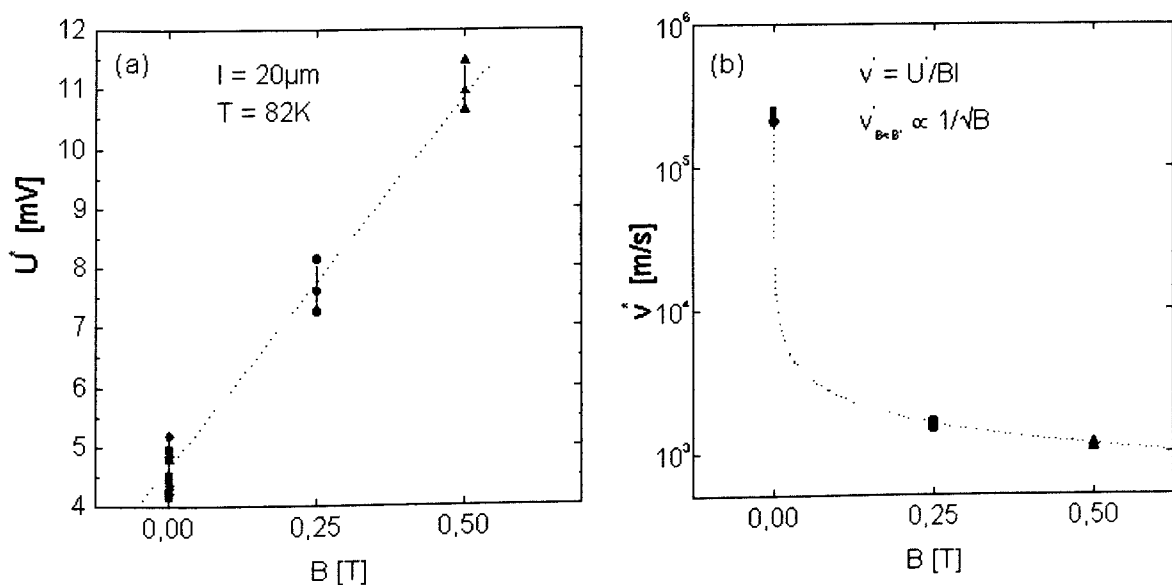


Abb. 4.26: (a) Abhängigkeit der kritischen Spannung U^* U^+ vom angelegten Magnetfeld für eine Mikrobrücke mit $l = 20\mu\text{m}$ bei $T = 82\text{K}$. In (b) ist die entsprechende Magnetfeldabhängigkeit der kritischen Geschwindigkeit $v^* = U^*/Bl$ dargestellt, wobei die gestrichelte Linie die für $B < B^*$ erwartete $1/\sqrt{B}$ -Abhängigkeit wiedergibt.

Differentieller Widerstand

Für die genaue Charakterisierung der FFI wurde der differentielle Widerstand elektronisch bestimmt. Dazu wird ein Wechselstrom mit einer konstanten und möglichst kleinen Amplitude ($I_{ac} \approx 6 \mu A$, $I_{ac}/I^* < 0,3\%$ und $f = 120 kHz$) dem dc-Strom I_{dc} , der an der Brücke anliegt, überlagert. Gemessen wird sowohl die dc-Spannung U_{dc} als auch die Wechselspannung U_{ac} , die an der Probe abfallen. Letzteres geschieht mit Hilfe von Lock-In-Technologie bei 120kHz. Der differentielle Widerstand ergibt sich dann aus $R_{diff} = U_{ac}/I_{ac}$. Durch die geringe ac-Amplitude wird erreicht, daß für die Widerstandsmessung nur der Verlauf der IU-Kennlinie im Strombereich um I_{dc} zugrunde gelegt wird, und somit die Werte durch die extreme Nichtlinearität im Bereich der kritischen Spannung nicht verfälscht werden. In Abb. 4.27a u. b ist eine typische Kombination aus IU-Kennlinie und Strom-Widerstands-Kennlinie wiedergegeben. Die Kurven zeigen deutlich den instantanen Wechsel zwischen Flux-Flow- und Instabilitätsbereich. Der differentielle Widerstand oberhalb der Instabilität R_{diff}^+ steigt nur leicht mit zunehmender Temperatur an und nimmt erst bei Temperaturen nahe T_c stärker zu (Abb. 4.27c). Dabei ist er mit Werten $R_{diff}^+ \approx 1/3 \cdot R_n$ von der Größenordnung des normalleitenden Widerstandes R_n bei 100K, wobei R_n auch den Widerstand der dann normalleitenden Zuleitungen umfaßt. Dies deutet darauf hin, daß bei Spannungen $U > U^+$ die Mikrobrücke und nur die Mikrobrücke normalleitend ist.

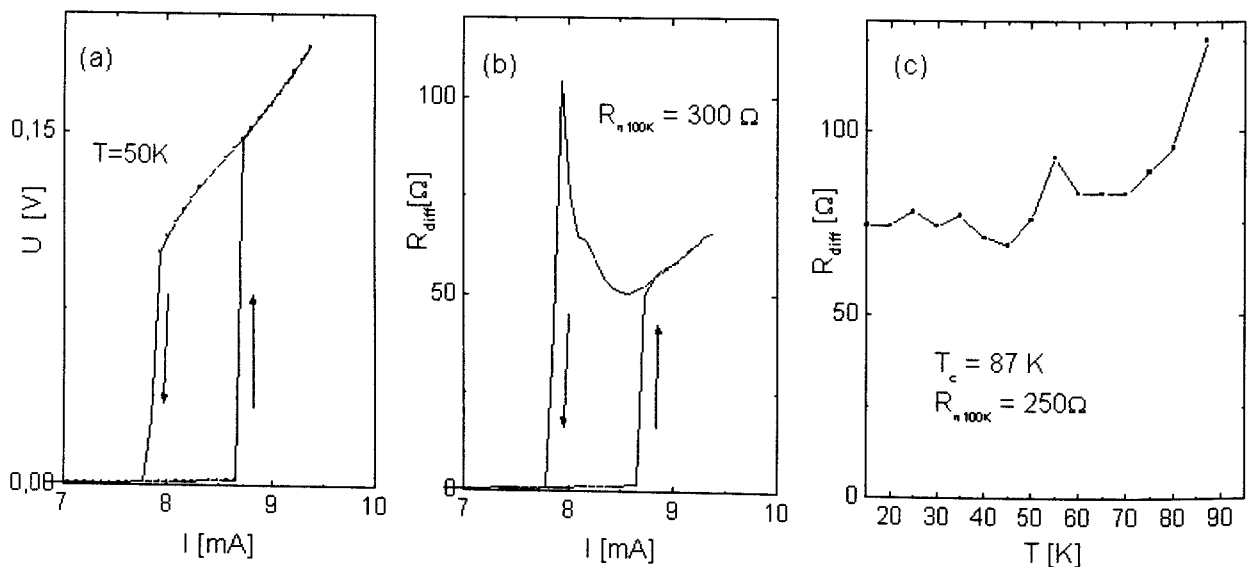


Abb. 4.27: IU-Kennlinie (a) und Strom-Widerstands-Kennlinie (b) eines korngrenzenfreien Stufenkontaktes im Bereich des Übergangs zwischen Flux-Flow- und Instabilitätsregime bei $T = 50 K$. Die Pfeile markieren den Verlauf. (c) Temperaturverlauf des differentiellen Widerstandes oberhalb des Instabilitätsbereiches eines anderen Stufenkontaktes. R_{diff}^+ ist über einem weiten Temperaturbereich konstant ($R_{diff}^+ \approx 1/3 R_{n, 100K}$) und steigt bei T_c stark an.

Dagegen besitzen Josephson-Stufenkontakte typischerweise temperaturunabhängige charakteristische Widerstände R_n im Bereich von maximal einigen Ohm. Diese sind damit deutlich kleiner als die differentiellen Widerstände R^+ oberhalb der Nichtlinearität an den korngrenzenfreien Kontakten.

Bisher wurde anhand von Strom-Spannungskennlinien die an korngrenzenfreien Kontakten auftretende Nichtlinearität charakterisiert. Dabei stellte sich heraus, daß nicht eine Stufe, sondern die Einschnürung zu einer Mikrobrücke für das Auftreten dieses Verhaltens verantwortlich ist. Es konnte mit Hilfe eines Modells gezeigt werden, daß die bei den auftretenden Leistungen entstehenden Temperaturanstiege zu klein sind, als daß sie ein so extremes nichtlineares Verhalten hervorrufen könnten. Aufgrund des Vergleichs der Meßwerte von U^* und R^+ an diesen Kontakten mit den Werten der kritische Spannung U_c und des normalleitenden Widerstands R_n , die typischerweise bei Josephson-Kontakten zu verzeichnen sind, können Josephson-Effekte als Erklärung für das nichtlineare Verhalten der korngrenzenfreien Stufenkontakte und Mikrobrücken ausgeschlossen werden. Vielmehr spricht die Übereinstimmung der Werte der kritischen Spannung U^* und der daraus ermittelten kritischen Geschwindigkeit v^* mit den Literaturwerten und der Hinweis, daß die Mikrobrücke bei Spannungen $U > U^+$ wahrscheinlich normalleitend ist, dafür, daß es sich offenbar um Flux-Flow-Instabilitäten infolge von überkritischen Flußfadengeschwindigkeiten mit anschließender thermischer Aufheizung über die Sprungtemperatur handelt.

Bei den untersuchten Mikrobrücken traten diese FFI aufgrund der benötigten hohen kritischen Geschwindigkeiten und den damit verbundenen hohen Spannungen und Strömen bei relativ hohen Leistungen im Bereich von 1-100 μ W auf. Dies stellt ein Hindernis bezüglich der Anwendung von Kontakten auf der Basis von Flux-Flow-Instabilitäten dar. Ein Ausweg, der z.B. auch bei Flux-Flow-Kontakten eingesetzt wird, besteht in der Verkleinerung der Brückendimensionierung. Durch Reduzierung der Mikrobrückenlänge treten wegen $U^* = v^* B l$ FFI schon bei kleineren Spannungen an der Mikrobrücke auf. So konnte an einer 4 μ m langen Mikrobrücke schon bei um einen Faktor 10 kleineren Spannungen FFI beobachtet werden (vgl. Abb. 4.28 und Abb. 4.26). Die kritische Geschwindigkeit bleibt hierbei unverändert.

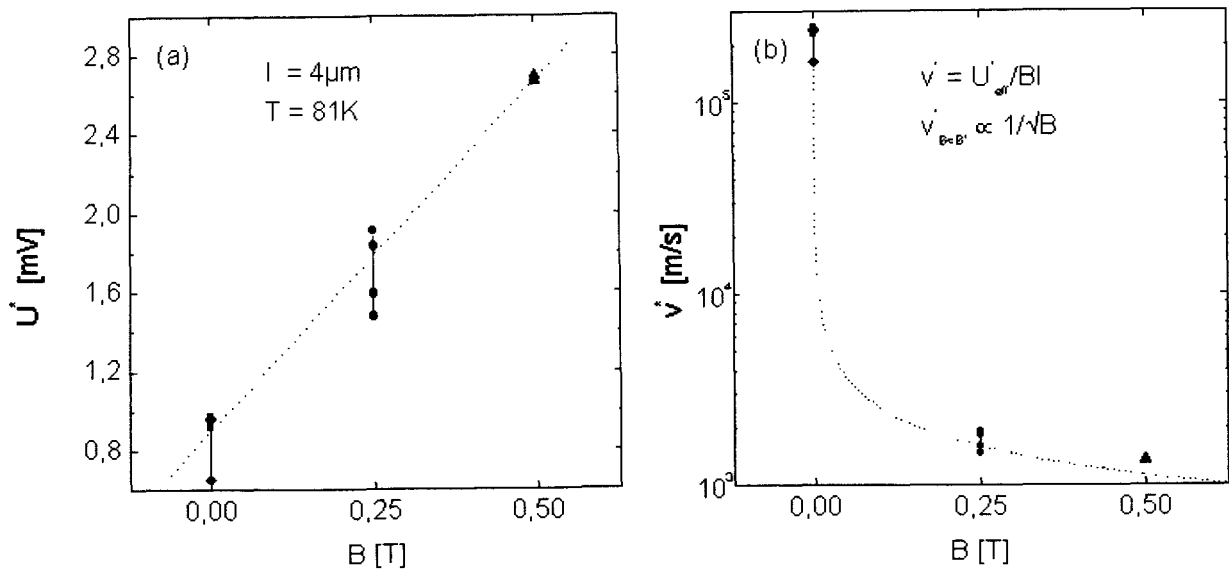


Abb. 4.28: (a) Magnetfeldabhängigkeit der kritischen Spannung U^* ($U^* = 0,2 \cdot U_{eff}^*$) für eine $4 \mu\text{m}$ lange Mikrobrücke bei $T = 81\text{K}$. In (b) ist die entsprechende Abhängigkeit für die kritische Geschwindigkeit $v^* = U_{eff}^*/Bl$ dargestellt.

Eine Verengung der supraleitenden Querschnittsfläche führt zu einer Verringerung des Stromes bei konstanter Spannung. Die Einengung kann mittels Lithographie oder mittels Schädigung z.B. durch Ionenbestrahlung erfolgen. Dieses war jedoch nicht Gegenstand der Arbeit.

Das beobachtete nichtlineare Verhalten von korngrenzenfreien YBCO-Stufenkontakten und -Mikrobrücken auf Saphir läßt sich sowohl aufgrund der Übereinstimmung der experimentellen Werte mit der Theorie der FFI und der Literatur als auch der deutlichen Abweichung von anderen grundsätzlich in Frage kommenden Effekten (Josephson-Effekt und thermische Effekte) als Flux-Flow-Instabilität aufgrund von hohen Vortexgeschwindigkeiten erklären. Aufgrund ihrer ausgezeichneten Stabilität bis zu hohen Leistungen können diese FFI-Kontakte bei ausreichend kleiner Dimensionierung eventuell ein Potential für Anwendungen darstellen.

4.2.2 Korngrenzenkontakte

In Stufenkontakten auf CeO_2 -Stufen mit $\alpha = 60^\circ$ bilden sich im Gegensatz zu den YBCO-Schichten auf CeO_2 -Stufen mit $\alpha < 45^\circ$ und $\alpha > 70^\circ$ an der Stufe Korngrenzen aus (s. Abschn. 4.1 und Abb. 4.29). In diesem Teil sollen die elektrischen Messungen an diesen Kontakten vorgestellt werden. Dazu werden die Kontakte anhand von Strom-Spannungskennlinien und der Variation des kritischen Stromes im Magnetfeld charakterisiert und mit Stufenkontakten auf Standardsubstraten (LaAlO_3 und SrTiO_3) verglichen.

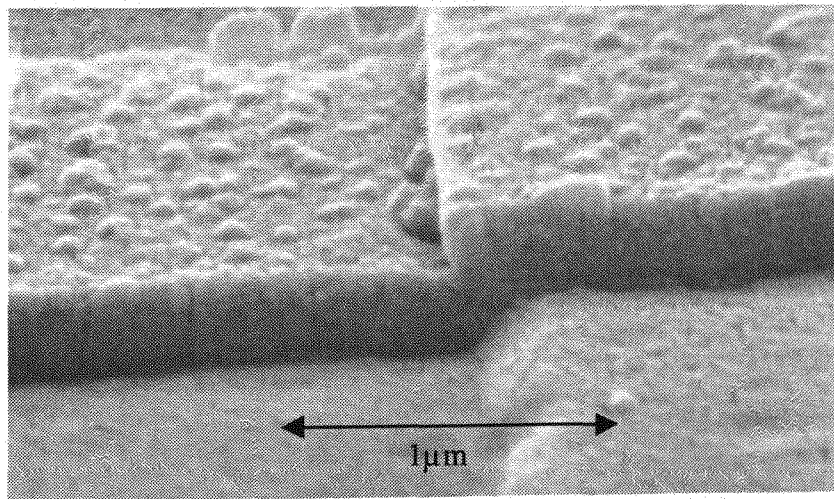


Abb. 4.29: SEM-Aufnahme eines $2\mu\text{m}$ breiten Stufenkontaktes auf einer 60° Stufe in CeO_2 auf Saphir.

Ein Hinweis auf das Verhalten von Kontakten ist durch die Form der Strom-Spannungskennlinien gegeben. Bei kleinen Spannungen wird zwischen RSJ- und Flux-Flow-Verhalten unterschieden. Im Gegensatz zu den in Abschn. 4.2 untersuchten Flux-Flow-Kontakten ist das Verhalten der Kontakte auf Saphir bei einem Winkel von $\alpha \approx 60^\circ$ der CeO_2 -Stufe und einem Verhältnis von Filmdicke zu Stufenhöhe $t/h \approx 3/2$ RSJ-ähnlich (Abb. 4.30a). Die IU-Kennlinie zeigt einen Verlauf, der für geshuntete Josephson-Kontakte erwartet wird (vgl. Abb. 2.9), ein ähnlicher

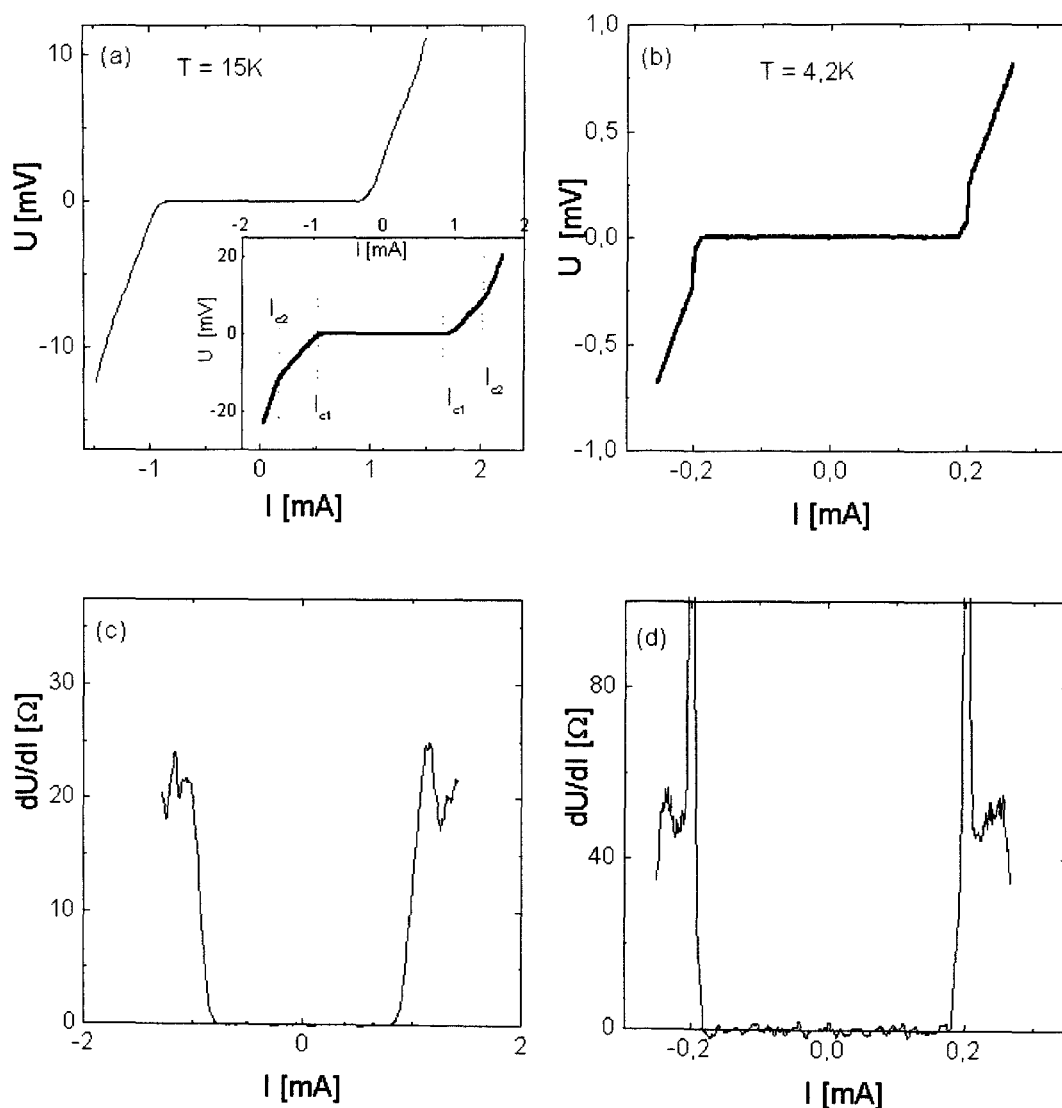


Abb. 4.30: (a) Strom-Spannungs-Kennlinie für einen $2\mu\text{m}$ breiten CeO_2 -Stufenkontakt ($\alpha = 60^\circ$, $t/h = 3/2$) auf Saphir bei $T = 15\text{K}$. Das Inset zeigt einen größeren Ausschnitt der gleichen Kurve. Die beiden unterschiedlichen Steigungen des resistiven Astes deuten auf eine Reihenschaltung zweier Korngrenzen hin. (b) IU-Kennlinie für einen $0,7\mu\text{m}$ breiten Stufenkontakt ($\alpha = 60^\circ$, $t/h = 1/2$) auf SrTiO_3 bei $T = 4,2\text{K}$. (c) Ableitung dU/dI der in (a) gezeigten Kurve. (d) Ableitung dU/dI der in (d) gezeigten Kurve.

Verlauf wurde an einer Referenzprobe auf einer Stufe in SrTiO_3 gemessen (Abb. 4.30b). Die Auftragung des differentiellen Widerstandes dU/dI in Abb. 4.30c und d zeigt jeweils deutlich die negative Krümmung der Kennlinie im dissipativen Bereich. Das Auftreten des zweiten Knicks in der IU-Kennlinie des Kontaktes auf Saphir (s. Inset in Abb. 4.30a) deutet darauf hin, daß der Kontakt aus zwei in Reihe geschalteten Korngrenzen mit um ca. 50% unterschiedlichen kritischen Strömen besteht. Die strukturellen Untersuchungen (Abschn. 4.1) ergaben an der

CeO₂-Stufe ein zum restlichen Film um 60° verkipptes Wachstum des YBCO. Die Korngrenzen bilden sich ähnlich wie in YBCO-Stufenkontakten in SrTiO₃ oder LaAlO₃ jeweils oben und unten an der Stufe. Diese Korngrenzen scheinen für die beiden I_c -Werte I_{c1} und I_{c2} verantwortlich zu sein. Mit $I_{c1} \approx 0,9\text{mA}$ und $I_{c2} \approx 1,5\text{mA}$ bei 15K liegen diese Werte im für Josephson-Stufenkontakte üblichen Bereich.

Zu höheren Temperaturen verrunden die IU-Kennlinien immer mehr (Abb. 4.31a). Für dieses Verhalten gibt es mehrere unterschiedliche Erklärungen. So kann generell bei Korngrenzenkontakten zum einen die Kohärenzlänge $\xi(T) = \xi_s(0) \cdot (1-T/T_c)^{-1/2}$ bei hohen Temperaturen nahe der Sprungtemperatur T_c größer als die Barrierendicke b werden, so daß die Korngrenze nicht mehr als Josephson-Kontakt wirken kann (Proximity-Effekt), zum anderen kann es aufgrund von thermischen Stromfluktuationen zu thermisch aktiviertem Phasenschlupf (TAPS) kommen, was zu einer Verringerung des I_c und einer Verrundung der Kennlinien führt [Gro90]. Das ausgeprägte Verrunden in den Kontakten auf Saphir deutet jedoch zusätzlich auf eine inhomogene Verteilung der Stromdichte über die Breite des Kontaktes hin, d.h. der Kontakt scheint aus supraleitenden Filamenten mit jeweils leicht unterschiedlicher Stromdichte zu bestehen. Dieses führt dann zu einem unscharfen Übergang in der IU-Kennlinie in den resistiven Zustand, da die einzelnen Filamente bei unterschiedlichen aufgeprägten Transportströmen resistiv werden.

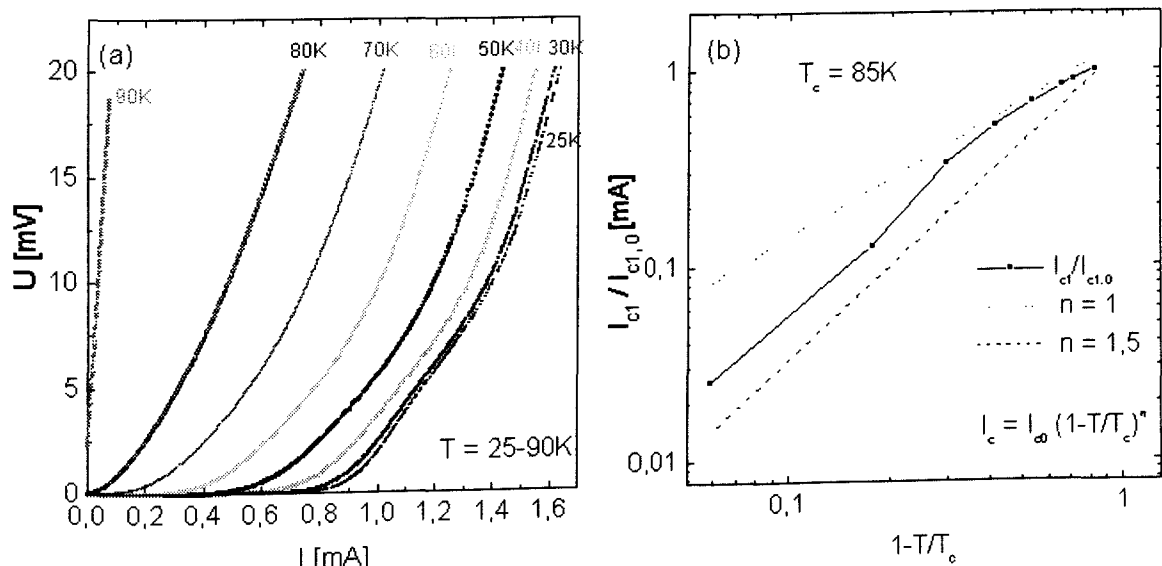


Abb. 4.31: (a) IU-Kennlinien eines Stufenkontaktes auf Saphir für verschiedene Temperaturen, (b) Temperaturabhängigkeit des kritischen Stroms I_{c1} für diesen Kontakt mit RSJ-ähnlichem Verhalten.

In Abb. 4.31b ist die Temperaturabhängigkeit des kritischen Stroms in doppellogarithmischer Form wiedergegeben. Der kritische Stroms hängt üblicherweise exponentiell von der Temperatur ab, $I_c(T) = I_c(0)(1-T/T_c)^n$. Der Exponent stellt dabei einen weiteren Hinweis auf das Kontaktverhalten dar. Die in Abb. 4.31b eingezeichneten Hilfslinien legen für I_{c1} eine Steigung im Bereich von $n = 1-1,5$ nahe. Diese fast lineare Abhängigkeit wird ebenfalls für andere Typen von Hoch- T_c -Josephson-Kontakte und insbesondere für Stufenkontakten gefunden [Del96, Sim91, Her91].

Die Abhängigkeit des kritischen Stromes vom Magnetfeld gibt Hinweise über die Stromverteilung im Kontakt. So ergibt eine homogene Stromverteilung eine Magnetfeldabhängigkeit, die einem Fraunhofermuster gleicht. Dabei sollte der kritische Strom im Idealfall bei magnetischen Flüssen Φ im Kontakt, die dem Vielfachem eines Flußquants Φ_0 entsprechen, gegen Null streben (s. Abb. 2.11). Abweichungen vom idealen Verhalten deuten auf eine inhomogene bzw. asymmetrische Stromverteilung im Kontakt hin, die dazu führt, daß der kritische Strom nur unvollständig unterdrückt wird [Bar82, Yan70]. Die inhomogene Stromverteilung kann in der Mikrostruktur des YBCO-Films, d.h. dem unsauberen Wachstums an der Stufe begründet liegen. Als Beispiel ist in Abb. 4.32b die Magnetfeldabhängigkeit des kritischen Stroms eines Referenzstufenkontaktes auf SrTiO_3 wiedergegeben. Der kritische Strom moduliert ähnlich einem Fraunhofermuster im Feld, allerdings nimmt I_c maximal nur um ca. 60% ab. Bei den untersuchten Stufenkontakten auf Saphir konnten dagegen nur minimale Modulationen des kritischen Stromes um ca. 2% festgestellt werden (Abb. 4.32a). Dieses weist, ähnlich wie die ausgeprägte Verrundung der IU-Kennlinien, auf eine sehr inhomogene Stromverteilung im Kontakt hin. In diesem Fall kann der Kontakt eine Parallelschaltung aus kleinen supraleitenden Filamenten mit unterschiedlichen Stromdichten darstellen. Aufgrund der unterschiedlichen Strombeiträge der einzelnen Filamente kann es deshalb im Magnetfeld nicht wie bei einer homogenen Stromverteilung zu einer Phasenverschiebung über den Kontakt kommen, infolge deren sich die einzelnen Strombeiträge aufheben. Ein weiterer Grund für die Abweichung vom idealen Magnetfeldverhalten der Saphirkontakte kann die kleine Josephson-Eindringtiefe aufgrund der hohen J_c -Werte sein, z.B. $\lambda_j \approx 0,2\mu\text{m}$ bei 20K. Daher stellen diese Kontakte ‚breite‘ Kontakte ($w = 2\mu\text{m} > \lambda_j$) dar, so daß die Eigenfelder im Kontakt das Verhalten des Kontaktes dominieren.

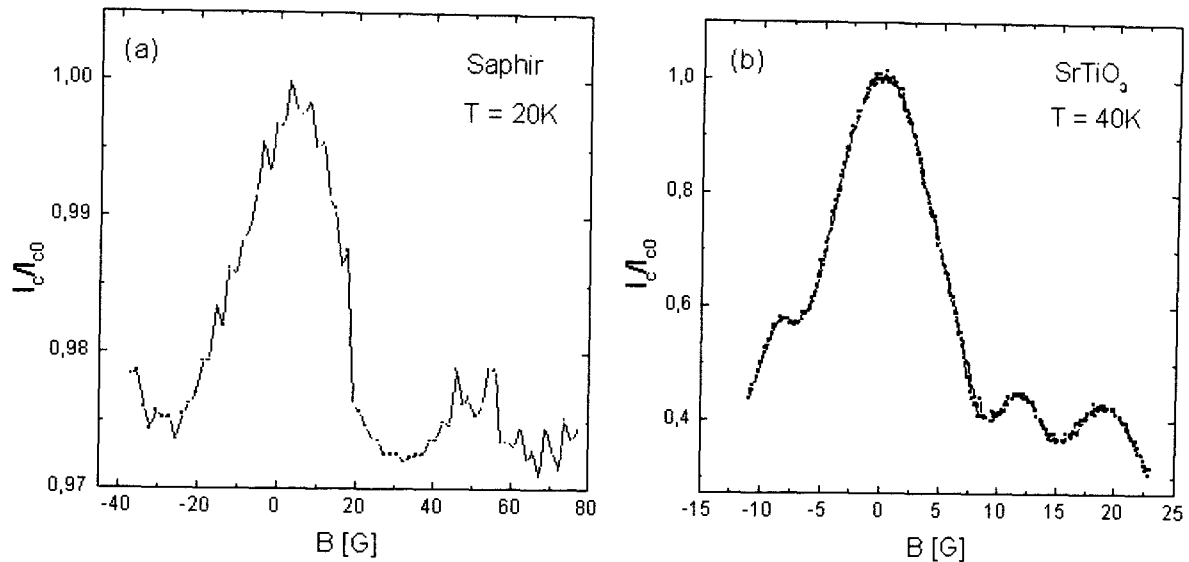


Abb. 4.32: (a) Magnetfeldabhängigkeit des kritischen Stroms für einen breiten Stufenkontakt auf Saphir ($w = 2\mu\text{m}$, $w/\lambda_j \approx 10$, $t/h = 3/2$) bei 20K. (b) $I_c(B)$ -Kurve für einen schmalen Referenz-Stufenkontakt auf SrTiO_3 ($w = 2\mu\text{m}$, $w/\lambda_j \approx 1/3$, $t/h = 1/2$) bei 40 K.

Die Inhomogenität der Kontakte spiegelt sich ebenfalls in der Streuung der Kontakteigenschaften über die gesamten 2“-Wafer wieder. Die kritischen Ströme der Stufenkontakte verteilt über 2“ auf Saphir ($w = 2\mu\text{m}$, $t = 200\text{nm}$ und $h = 150\text{nm}$) lagen im Bereich von $I_c = 0,1\text{-}1\text{mA}$ bei 10K und von $0,01\text{-}0,1\text{mA}$ bei 77K. (Bei hohen Temperaturen bestand z.T. aufgrund der starken Verrundung der Kurven die Schwierigkeit, den I_c -Wert genau zu bestimmen.) Die Werte waren damit bedeutend kleiner als die der korngrenzenfreien FFI-Kontakten, die einen um 1–2 Größenordnungen größeren kritischen Strom I^* besaßen (s. Abschn. 4.2.1), und vergleichbar mit denen von Stufenkontakten auf Standardsubstraten (s. [Vau95, Her91, Sim91]). Es ergaben sich Werte für die kritische Stromdichte von $J_c = 2 \cdot 10^4 - 2 \cdot 10^5 \text{ A/cm}^2$ bei 10K bzw. $J_c = 2 \cdot 10^3 - 2 \cdot 10^4 \text{ A/cm}^2$ bei 77K. Das Verhalten der Kontakte auf einem 2“-Wafer („on chip“) und auf unterschiedlichen 2“-Wafeln („chip to chip“) war durchaus reproduzierbar. Allerdings trat bei den Kontakten auf Saphir eine relativ hohe Streuung der kritischen Werte auf, wie in Abb. 4.33 gezeigt ist. Dies ist wahrscheinlich in dem unregelmäßigen Wachstum des YBCO-Films an der Stufe und damit des das Kontaktverhalten beeinflussenden Bereichs begründet. Trotz Optimierung des Herstellungsprozesses ist es bisher nicht gelungen, die Streuung

$$\sigma = \sqrt{\frac{1}{n} \sum_{i=1}^n (x_i - \bar{x})^2} \quad (4.4)$$

des kritischen Stroms auf einen Wert unterhalb von $\sigma \approx 37\%$ zu verringern. Daher erscheint z.Z. die reproduzierbare Herstellung von YBCO-Korngrenzenkontakten mit 60° CeO_2 -Stufen auf Saphir nicht möglich. Dagegen ließen sich die Referenz-Stufenkontakten auf LaAlO_3 durchaus reproduzierbar präparieren (s. Kap. 4.3.).

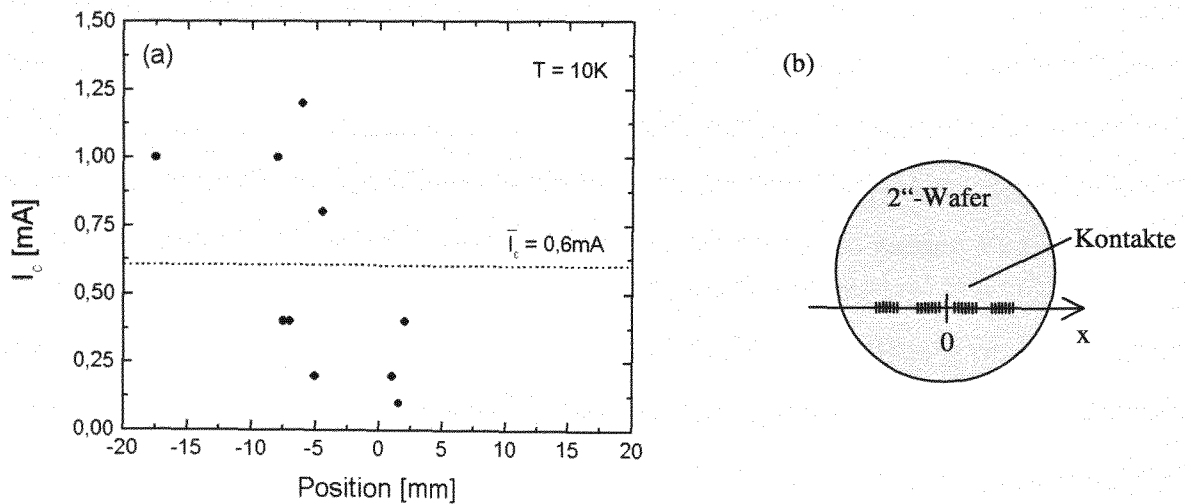


Abb. 4.33: (a) Streuung der kritischen Stromdichte I_c über einen 2"-Saphir-Wafer bei $T = 10 \text{ K}$ in einer Dimension. (b) Skizze der Lage der vermessenen Kontakte (vgl. mit Abb. 3.24).

Die Korngrenzenkontakte auf Saphir mit einer Stufe im CeO_2 ($\alpha \approx 60^\circ$) zeigten wahrscheinlich aufgrund ihrer Inhomogenität kein eindeutig nachweisbares Josephson-Verhalten; es lagen allerdings auch keine Flux-Flow-Kontakte vor. So ähnelten die IU-Kennlinien dem RSJ-Modell, jedoch fehlte eine ausgeprägtere Variation des kritischen Stromes im Magnetfeld. Dieses Verhalten kann durch die Ergebnisse der strukturellen Untersuchungen und dem Wachstum an der Stufe begründet werden. So sind unterschiedliche in-plane Orientierungen des senkrecht zur Stufe aufwachsenden YBCO möglich. Weiterhin können unterschiedliche Phasen auftreten. Bestätigt wird dieses Bild durch die große Streuung der Transporteigenschaften der Kontakte. In Kap 4.3 wird allerdings gezeigt werden, daß sich die Kontakte auf Saphir trotz der Abweichung vom idealen Verhalten durchaus für Anwendungen z.B. in rf-SQUIDs eignen. Erstaunlicherweise ist das Verhalten der SQUIDs mit derartigen Stufenkontakten auf Saphir durchaus vergleichbar mit dem der Stufenkontakt-SQUIDs auf Standardsubstraten.

4.3 Anwendung der Kontakte in rf-SQUIDs

Ein Hauptanwendungsgebiet von aktiven Bauelementen in der Kryoelektronik stellen SQUIDs (Supraleitende Quanten Interferenz Detektoren) dar. Deshalb soll in diesem Abschnitt die funktionelle Anwendbarkeit der entwickelten und hergestellten Kontakte (Josephson- und FFI-Kontakte auf 2“-Saphir-Wafer und als Referenz auf 2“-LaAlO₃-Wafer) in rf-SQUIDs aufgezeigt werden. Die eingesetzten SQUIDs sind zum einen einfache Magnetometer zum anderen planare Gradiometer, die teilweise zur Minimierung des Rauschens mit einem supraleitenden Film abgedeckt wurden. Zur Einführung der Untersuchungen sollen die einzelnen Bauelemente kurz erläutert werden und deren Funktionsweise kurz beschrieben werden. Daran anschließend werden die experimentellen Ergebnisse, die an den einzelnen Testbauelementen gewonnen wurden, präsentiert. Dabei sollen die Eigenschaften der auf unterschiedlichen Trägern unterschiedlich hergestellten rf-SQUIDs und Gradiometer kurz verglichen werden. Da das Hauptaugenmerk der Herstellung der Ausgangselemente, der Josephsonkontakte, galt, sind im Rahmen dieser Arbeit lediglich einige wenige Bauelemente exemplarisch hergestellt worden, so weit sie nicht, wie im Falle der rf-SQUIDs und Mehrlagengradiometer für andere Arbeiten [Sel97, Mau98] verwendet wurden. Daher können die exakten Daten für Hub, Feld-zu-Fluß-Koeffizient und Rauschverhalten der Bauelemente nicht unbedingt als endgültiges Ergebnis einer Optimierung eingeordnet werden. Insbesondere die Daten für die Bauelemente auf Saphir sind sicherlich noch verbesserungsfähig.

rf-SQUIDs

SQUIDs sind extrem empfindliche magnetische Fluß-Spannungs-Konverter, die den magnetischen Fluß periodisch mit der Periode Φ_0 in eine Spannung transformieren. Ein rf-SQUID besteht aus einer supraleitenden Schleife unterbrochen durch einen Josephson-Kontakt (Abb. 4.34). Über einen LC-Schwingkreis (Resonanzfrequenz in diesem Fall $f = 300 - 900$ MHz) wird die Dämpfung durch die supraleitende Schleife gemessen. Der Gesamtfluß $\Phi = \Phi_a - L_s I$ innerhalb des Rings setzt sich zusammen aus dem Fluß Φ_a eines angelegten Magnetfelds und dem Fluß $L_s I$ aufgrund des induzierten Abschirmstroms I , wobei L_s die SQUID-Induktivität bezeichnet. Der Strom ist durch den Josephson-Kontakts entsprechend der

1. Josephson-Gleichung beschränkt: $I_s = I_c \sin \varphi$ (Gl. 2.24). Aufgrund der Flußquantisierung in der supraleitenden Schleife gilt: $\varphi = 2\pi\Phi/\Phi_0$. Damit ist der gesamte Fluß $\Phi = \Phi_a - L_s I_c \sin(2\pi\Phi/\Phi_0)$, d.h. die Veränderung des Flusses wird durch die Induktivität gedämpft. Beim Anlegen eines äußeren Feldes wird das Eindringen von Fluß durch den Abschirmstrom verhindert, solange der supraleitende Kreis geschlossen ist. Sobald der Abschirmstrom den kritischen Strom des Kontaktes erreicht hat, schaltet dieser in den resistiven Zustand, und der supraleitende Ring ist unterbrochen. Jetzt kann Fluß in die Schleife eindringen. Der Abschirmstrom nimmt dadurch ab, und der Kontakt schaltet wieder zurück in den supraleitenden Zustand.

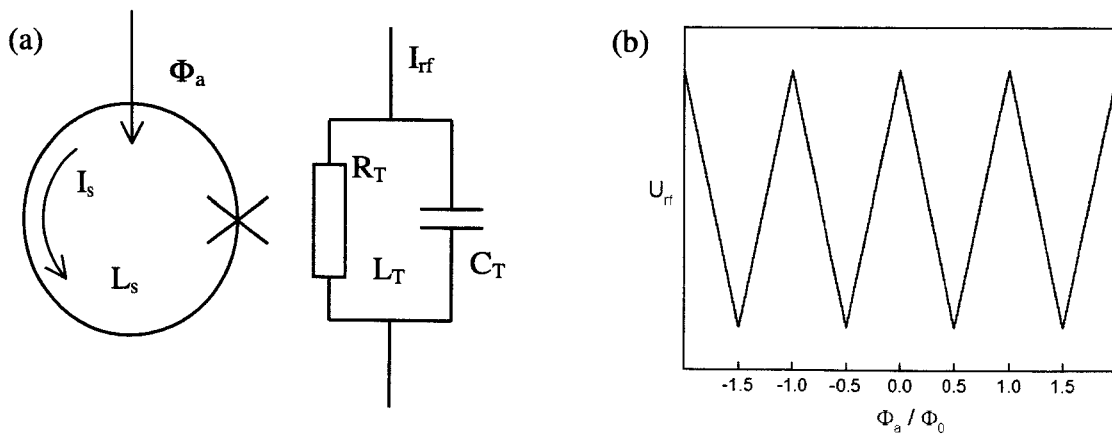


Abb. 4.34: Schematische Darstellung (a) eines rf-SQUIDs mit Schwingkreis und (b) der Fluß-Spannungs-Konvertierung.

In der Arbeit wurden als Magnetometer $8 \times 8 \text{ mm}^2$ -rf-Washer-SQUIDs (Abb. 4.35) eingesetzt, bei denen der Washer (s. Abb. 4.35) den Fluß auf das SQUID-Loch konzentriert. Um möglichst magnetfeldstabile Kontakte einsetzen zu können, beträgt die Kontaktbreite $2 \mu\text{m}$, eine Breite, die mit optischer Lithographie noch reproduzierbar herstellbar ist [Vau95].

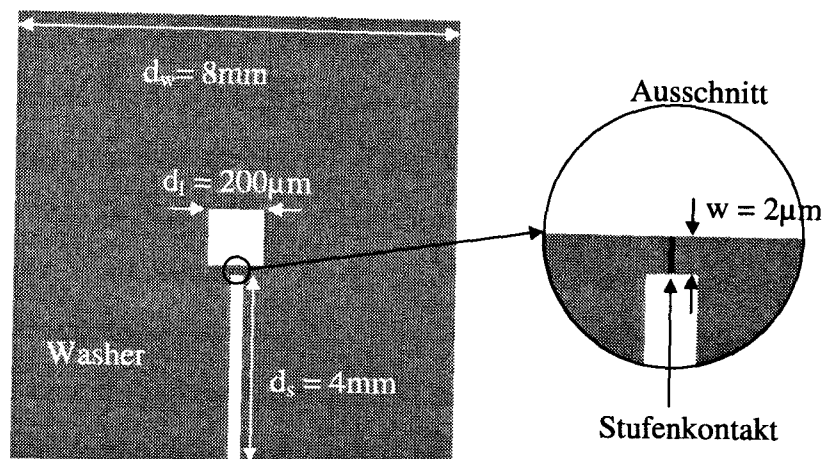


Abb. 4.35: Skizze eines rf-Washer-SQUID

Zur Charakterisierung und zum Vergleich von SQUIDs bieten sich der Vergleich unterschiedlicher Parameter und Messungen an. Zur Ermittlung der Fluß-Spannungs-Kennlinie, dem sogenannten Dreieckssignal $U_{rf}(\Phi_a)$ wird der äußere Fluß Φ_a über ein Wechselfeld ($\approx 160\text{Hz}$) am Tankschwingkreis variiert und die Spannung U_{rf} ausgelesen. Der Hub ΔU_{rf} , d.h. die Amplitude des Ausgangssignals, ist maximal, wenn für den sog. Modulationsparameter β_L des SQUIDs gilt:

$$\beta_L \equiv (2\pi L_s I_c) / \Phi_0 = 1. \quad (4.5)$$

Als Transferfunktion wird der Quotient aus Hub und Fluß $\Delta U_{rf} / \Phi_0$, d.h. die maximale Steigung der Dreiecksfunktion, bezeichnet. Die experimentell zugängliche Periode wird durch die angelegte Spannung, und damit die Induktion, definiert, die nötig ist, um mit der Spule (dem Tankschwingkreis) einen Fluß von einem Φ_0 zu erzeugen, d.h. $dU_a/d\Phi_0$. Der Feld-zu-Fluß-Koeffizient $dB/d\Phi$ bestimmt zusammen mit dem Flußrauschen die Feldempfindlichkeit. Er entspricht dem von außen angelegtem homogenen Feld, daß zur Erzeugung eines Flußquants Φ_0 in der Schleife nötig ist.

Planare Gradiometer

SQUIDs werden nicht nur in Magnetometern, sondern auch in Gradiometern eingesetzt, die die räumliche Änderung des magnetischen Flusses messen. Planare Gradiometer 1.Ordnung bestehen aus zwei in einer Ebene liegenden Schleifen mit dem Abstand BL (Basislänge). Aufgrund der

entsprechenden Zusammenschaltung der Schleifen werden die Abschirmströme, die in jeder Schleife durch das Feld erzeugt werden, voneinander abgezogen, so daß nur die Differenz der senkrechten Komponenten des Flusses gemessen wird (Abb. 4.36a). Dieses bietet die Möglichkeit, Störungen aus der Umgebung, die in gleicher Weise an beiden Schleifen vorliegen, z.B. das Erdfeld, herauszufiltern, und nur das eigentliche Signal, welches nahe an einer der Schleifen anliegt, aufzunehmen. Ein perfektes, d.h. absolut symmetrisches Gradiometer ist deshalb unempfindlich für das homogene magnetische Feld und nur empfindlich für räumliche Feldänderungen. Die Güte von Gradiometern wird durch die Balance β bestimmt, die durch das Verhältnis von Feld-zu-Fluß-Koeffizient ($\partial B/\partial \Phi$), den Feldgradient-zu-Fluß-Koeffizienten ($\eta = \partial^2 B/\partial x \cdot \partial \Phi_0$) und die Basislänge BL

$$\beta_L = \frac{\partial B/\partial \Phi_0}{\partial^2 B/\partial x \partial \Phi_0} \frac{1}{BL} \quad (4.6)$$

gegeben ist. Es gibt unterschiedliche Ausführungen für planare rf-SQUID Gradiometer. Klassisch werden zwei Aufnehmerspulen an ein Magnetometer gekoppelt. Dieses hat den Nachteil, daß durch das Magnetometer nicht nur die Differenz, sondern auch das Feld gemessen wird. Am Institut wurde deshalb das rf-Doppelloch-Gradiometer entwickelt, das sich aus 2 symmetrischen planaren Washer-rf-SQUIDs mit gemeinsamem Kontakt zusammensetzt (Abb. 4.36) [Zha97]. Wegen seiner perfekten Symmetrie sind extrem große Werte für die Balance möglich. Die Balance ist hierbei nur begrenzt durch die Genauigkeitsgrenzen der Lithographie und durch eventuelle Schwankungen der Filmqualität über das Substrat.

Die Empfindlichkeit von Gradiometern wird im Allgemeinen u.a. durch die Basislänge bestimmt. Deshalb ist es erstrebenswert, die Basislänge entsprechend der Anwendung wählen zu können. Mit steigender Basislänge steigt allerdings durch die zunehmende Schleifenfläche die Induktivität, was zu einem erhöhten Flußrauschen $\sqrt{S_\Phi} = (k_B T L_s)^{1/2}$ führt. Eine Möglichkeit, die Induktivität und damit das Flußrauschen bei steigender Basislänge konstant zu halten, liegt darin, den Schlitz der Zuleitungen mit einer supraleitenden Schicht abzudecken (Abb. 4.36b). Für diese Technologie ist es notwendig, auf das Gradiometer ein Isolator/YBCO-Schichtpaket abzuscheiden, ohne daß Kurzschlüsse zwischen unterem und oberem YBCO-Film auftreten. Dies war eine im Rahmen dieser Arbeit präparativ angegangene Fragestellung, die die erfolgte Waferskalierung der Stufenkontaktherstellung auch für Mehrlagenprozesse demonstrieren sollte.

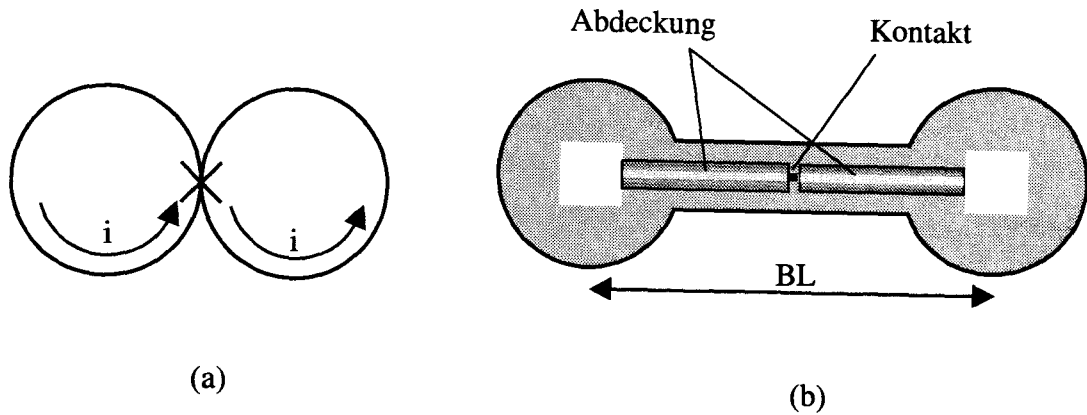


Abb. 4.36: Schematische Darstellung des Doppellochgradiometers: (a) Prinzip und (b) Realisierung mit supraleitender Abdeckung der Schlitz. (Typische Abmessungen sind: Basislänge: 5mm, Washer-Radius: 1,25mm, Aufnehmerfläche: $100 \times 100 \mu\text{m}^2$, Zuleitungsbreite: $100 \mu\text{m}$, Schlitzbreite: $5 \mu\text{m}$, Abdeckungsbreite: $>15 \mu\text{m}$).

Rauschen

Das Rauschen von SQUIDs wird als spektrale Leistungsdichte angegeben. Dabei wird das Spannungsrauschen $\sqrt{S_v}$ gemessen, aus dem das Flußrauschen

$$\sqrt{S_\Phi} = \sqrt{S_v} / \frac{dU}{d\Phi}, \quad (4.7)$$

welches das Auflösungsvermögen des SQUID angibt, abgeleitet werden kann. Es lassen sich prinzipiell zwei Rauschbeiträge unterscheiden, die in unterschiedlichen Frequenzbereichen auftreten. Bei hohen Frequenzen (typisch $f > 10\text{-}100\text{Hz}$) ist die spektrale Rauschleistungsdichte frequenzunabhängig und wird daher als weißes Rauschen S_w bezeichnet. Im niederfrequenten Bereich überwiegt unterhalb einer Eckfrequenz eine idealerweise der Frequenz umgekehrt proportionale Komponente, das sog. $1/f$ -Rauschen. Das weiße Rauschen ist hauptsächlich in der thermischen Bewegung der freien Ladungsträger begründet. Da die Temperatur der Ausselelektronik deutlich höher ist als die Temperatur von SQUID und Schwingkreis, dominiert diese das weiße Rauschen. Das $1/f$ -Rauschen wird zum einen durch Fluktuationen vor allem des kritischen Stromes I_c [Gro91a, Mar97], zum anderen durch die Bewegung der Flußfäden im Supraleiter [Fer94] verursacht. Der erste Beitrag, die Fluktuationen von I_c , wurde von der in dieser Arbeit eingesetzten Elektronik unterdrückt.

4.3.1 Charakterisierung und Vergleich von rf-SQUIDs

Als Anwendungstest wurden auf 2“-Saphir- und 2“-LaAlO₃-Wafer Magnetometer und planare Gradiometer auf der Basis von rf-SQUIDs hergestellt worden. Dazu wurden zum einen LaAlO₃-Korngrenzenkontakte mit einer Filmdicke von $t = 170\text{-}200\text{nm}$, einer Stufenhöhe von $h = 250\text{-}300\text{nm}$ und einem Stufenwinkel von $\alpha = 70^\circ$ eingesetzt. Hieran sollte die Möglichkeit der Waferskalierung und der Herstellung großflächiger Einzel- und Multilagen-Gradiometer mittels Sputtertechnologie demonstriert werden. Zum anderen wurden Josephson- sowie FFI-Kontakte auf Al₂O₃ mit einer Filmdicke von $t = 200\text{nm}$ bzw. 300nm , einer Stufenhöhe von $h = 150\text{nm}$ und einem Stufenwinkel von $\alpha = 60^\circ$ bzw. 40° in rf-SQUIDs verwendet. An diesen Stufenkontakten auf Saphir sollte sowohl deren Funktionsfähigkeit aufgezeigt als auch die auftretenden Probleme untersucht werden. Zuerst sollen die Ergebnisse an Magnetometern und dann die an Gradiometern präsentiert und verglichen werden. Die Meßplätze und die Meßverfahren sind ausführlich in Ref. [Sel97] bzw. [Mau98] beschrieben.

Magnetometer auf 2“-LaAlO₃

In Abb. 4.37 ist eine typische Fluß-Spannungs-Kennlinie für rf-SQUIDs auf LaAlO₃ dargestellt.

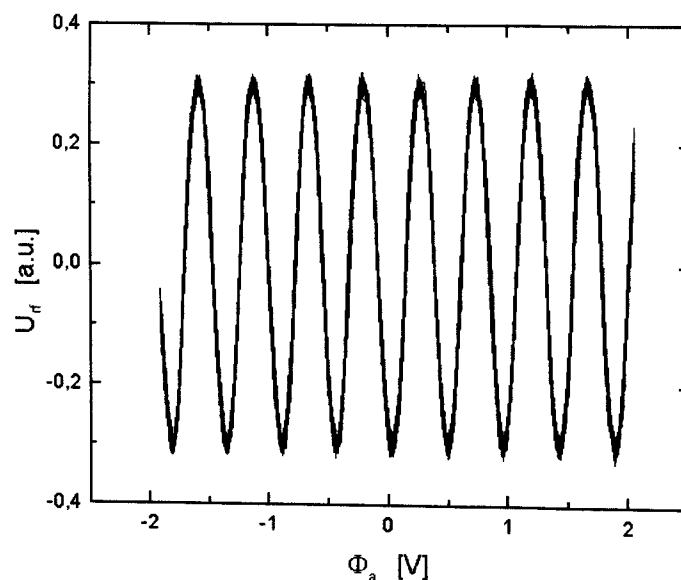


Abb. 4.37: Fluß-Spannungs-Kennlinie (Dreieckssignal) $U_r(\Phi_a)$ eines rf-SQUIDs auf LaAlO₃.

Die Eigenschaften der Magnetometer, charakterisiert durch Parameter wie z.B. dem Hub, waren durchweg vergleichbar mit Proben, die mit alternativen Depositionsverfahren (PLD) oder alternativen Kontakttypen (Bikristallkontakte) hergestellt wurden (Tab. 4.3).

Magneto- meter	Substrat	Kontakttyp	Hub ΔU_{rf} [a.u.]	Periode $dU_s/d\Phi_0$ [a.u.]	$dB/d\Phi$ [nT/ Φ_0]	$\sqrt{S_\Phi}$ @100Hz [$\mu\Phi_0/\sqrt{\text{Hz}}$]
2L-S	2"-LAO	Stufenkontakt	1	1	1,8	<120*
1L-S-PLD ^[Sel97]	1cm ² - LAO	Stufenkontakt	1	1	1,8	<120*
1S-B	1cm ² - STO	Bikristallkon.	1	1	1,8	<120*
2A-S	2"-ALO	Stufenkontakt	0,7	3	5	<120*
2A-FFI	2"-ALO	FFI-Kontakt	0,5	11	-	-

*Tab. 4.3: Eigenschaften der untersuchten Magnetometer. Alle Proben basierten auf Kontakten aus gesputterten Schichten. und besaßen die gleiche SQUID-Geometrie. Lediglich 1L-S-PLD wurde aus einem laserablatierten Film strukturiert. (*Bei den Rauschmessungen war die Auflösungsgrenze der Meßelektronik erreicht).*

Die gesputterten Magnetometer erwiesen sich als sehr langzeitstabil. Die Proben zeigten über den Zeitraum von 2 Jahren keine Verschlechterung der SQUID-Funktionen und Parameter, solange sie in gewissen Abständen getrimmt wurden. Daran änderte auch die ‚Perforierung‘ mit einem Raster von 2 μm großen Löchern im Abstand von 50 μm nichts. Diese gesputterten rf-Stufenkontakt-SQUIDs wurden für Rauschmessungen an YBCO-Filmen mit künstlichen Defekten eingesetzt [Sel97].

Magnetometer auf 2"- Al₂O₃

Auch die Magnetometer auf Saphir zeigen ein deutliches SQUID-Signal. Dieses ist durchaus reproduzierbar, d.h. bei konstanten Parametern der Regelelektronik, wie z.B. der Pumpleistung bzw. der Resonanzfrequenz, ändert sich die Fluß-Spannungs-Kennlinie nicht. Dabei besitzen die rf-SQUIDs Unregelmäßigkeiten in der Fluß-Spannungs-Kennlinie (Abb. 4.38). Die Schwankungen im Dreieckssignal lassen deshalb auf einen inhomogenen Kontakt schließen, was sich mit den strukturellen und elektrischen Untersuchungen an den Kontakten deckt (Kap.

4.1.3.4 u. 4.2.2). Wahrscheinlich kann der Fluß wegen der vermuteten Parallelschaltung von Kontakten nur sukzessive in die Schleife eindringen. Hierbei können dann statistische Schwankungen des Abschirmstromes zu geringen Schwankungen des Ausgangssignals führen. Typische Werte für die charakteristischen Parameter sind für den Hub $\Delta U_{rf} = 0,5-0,7$ und für den Feld-zu-Fluß-Koeffizienten $dB/d\Phi = 5nT/\Phi_0$ (Tab. 4.3).

Für die rf-SQUIDs auf Saphir konnte ebenfalls über mehrere Monate keine Degradation festgestellt werden. Allerdings verschlechterte sich die Leistungscharakteristik durch nachträgliche Strukturierung (z.B. Löcher ($d = 2,5\mu m$) im Abstand von $10\mu m$). Dabei steht nicht fest, ob die Degradation durch den Prozeß an sich oder durch die Entfernung des supraleitenden Materials verursacht wurde. Es weist jedoch auf die höhere Empfindlichkeit der Stufenkontakte auf Saphir hin.

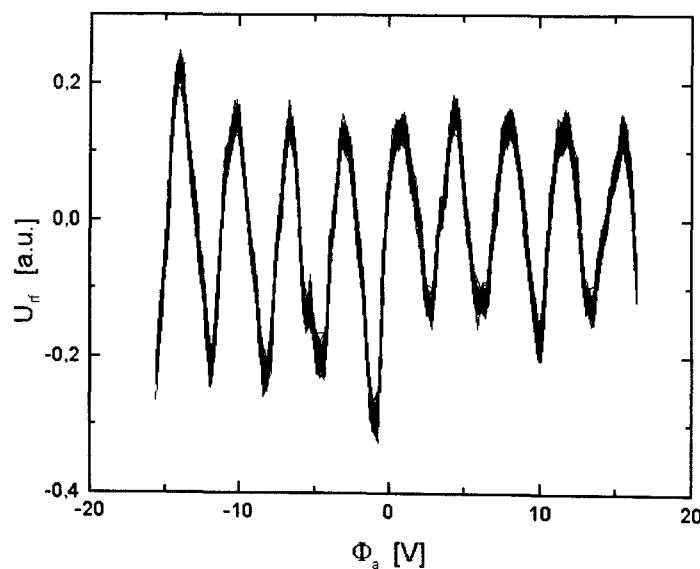


Abb. 4.38: Fluß-Spannungs-Kennlinie (Dreieckssignal) $U_{rf}(\Phi_a)$ eines rf-SQUIDs auf Saphir. Die Unregelmäßigkeiten lassen auf einen inhomogenen Kontakt schließen, der eventuell aus einer Parallelschaltung mehrerer Kontakte besteht.

Magnetometer mit FFI-Kontakten auf Al_2O_3

rf-SQUIDs mit korngrenzenfreien und damit FFI-Kontakten auf Saphir scheinen ebenfalls zu funktionieren (Abb. 4.39). Hierbei ist insbesondere zu bemerken, daß die verwandte Meßelektronik eigentlich für 2-3 Größenordnungen kleinere kritische Ströme als die der FFI-Kontakte (1-10mA, s. Abschn. 4.2.1) konzipiert ist. Der genaue Wert des durch die Elektronik in den SQUID induzierten Stromes ist allerdings nicht, da die Kopplung zwischen SQUID und Tankschwingkreis nur grob abgeschätzt werden kann. Ursache der periodischen Spannungsmodulation könnten experimentell bestätigte FFI der Kontakte oder aber kohärente Vortex-Antivortex-Bewegungen in Analogie zum Mechanismus von Mikrobrücken sein. Auch in diesem Fall sind die Fluß-Spannungs-Kennlinien durchaus reproduzierbar. Jedoch wurden die Dreieckssignale von starken Störsignalen überlagert, wobei unklar ist, ob sie durch den Kontakt oder durch die im Grenzbereich betriebene Elektronik verursacht werden.

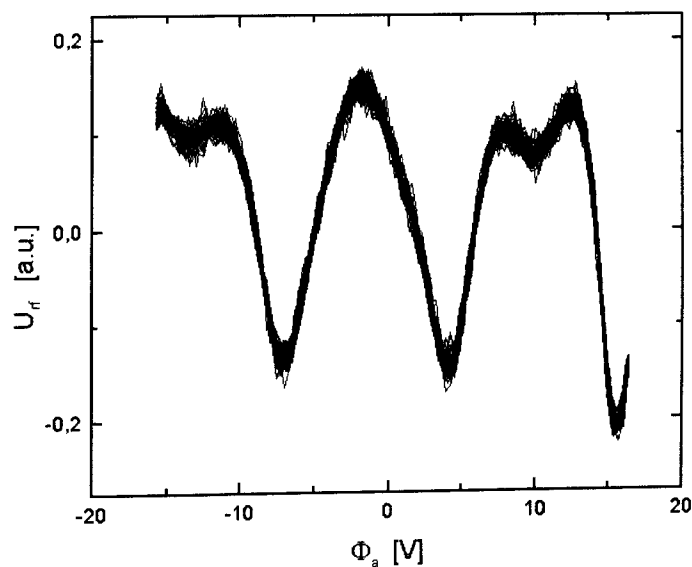


Abb. 4.39. Typische Fluß-Spannungs-Kennlinie (Dreieckssignal) für rf-SQUIDs auf der Basis von FFI-Kontakten.

Vergleich der unterschiedlichen Magnetometer

Der Hub der Magnetometer auf Saphir ist mit 0,5-0,7 deutlich kleiner als der der SQUIDs auf LaAlO_3 mit 1 (Tab. 4.3). Bei den Korngrenzen-Kontakten kann dieses durch Inhomogenitäten im Kontaktbereich verursacht werden, die auch zu den Verrundungen der IU-Kennlinien (Kap. 4.2.2) führten. Bei den FFI-Kontakten kann es eine Folge der deutlichen Abweichung des

Modulationsparameter $\beta_L \approx 10-100$ von 1 aufgrund der großen kritischen Ströme oder Folge eines anderen (nicht-Josephson-artigen) Mechanismus sein, der für diese Kontakte vorliegt..

Die Werte des Feld-zu-Fluß-Koeffizienten der unterschiedlichen SQUIDs sollten allerdings ähnlich sein, da dieser hauptsächlich durch das SQUID-Design und nur geringfügig durch die Schichtqualität bestimmt wird. Für die unterschiedlichen SQUIDs auf LaAlO_3 kann dieses auch beobachtet werden, jedoch ist für die ‚Saphir-SQUIDs‘ der Feld-zu-Fluß-Koeffizient generell um ca. einen Faktor 2,5 größer. Dies ist nicht mit dem unterschiedlichen Substratmaterial zu erklären. Vielmehr ist zu berücksichtigen, daß der Anteil des Magnetfeldes parallel zur Korngrenze für das Kontaktverhalten von entscheidender Bedeutung ist (s. Kap.2.3.3). Deshalb deutet der um einen Faktor 3 größere Feld-zu-Fluß-Koeffizient der SQUIDs auf Saphir eventuell darauf hin, daß die Korngrenze im Falle des Saphirs nicht senkrecht zur Substratebene, und damit parallel zu dem angelegte Magnetfeld, ausgerichtet ist, wie es für Bikristallkontakte oder auch für gesputterten und PLD-abgeschiedenen Stufenkontakten auf Standardsubstraten beobachtet wurde (s. z.B. [Vau95]). Dieses kann durch das unterschiedliche YBCO-Wachstum auf CeO -Stufen oder durch das Auftreten zusätzlicher Fremdphasen verursacht sein (s. Kap 4.1).

Da die Werte des weißen Rauschens $\sqrt{S_\Phi}$ jeweils im Bereich der Auflösungsgrenze der verwandten Meßelektronik lagen, kann alternativ das $1/f$ -Rauschen bzw. das weiße Rauschen im Feld verglichen werden. In einem angelegten Magnetfeld ist das Rauschverhalten für unterschiedlich hergestellte SQUIDs sehr ähnlich. In Abb. 4.40 ist das niederfrequente Rauschen von drei unterschiedlichen SQUIDs im Feld dargestellt. Es werden zwei gesputterte SQUID auf Saphir bzw. LaAlO_3 und ein ablatierter SQUID auf LaAlO_3 verglichen. In Abb. 4.40b ist, um einen besseren Eindruck der Feldabhängigkeit des niederfrequenten Rauschens zu bekommen, die integrale Darstellung $\int \sqrt{S_\Phi} df / \int df$ (von 0,5 bis 10Hz) gewählt worden. Bei kleinen Feldern unterhalb des sog. Penetrationsfeldes (Gl. 4.8) bewegt sich das Rauschen auf einem niedrigen Niveau. Ab einer magnetischen Induktion von $10\mu\text{T}$ ist eine deutliche Zunahme zu verzeichnen. Dieses ist auf das Eindringen des Feldes in den Washer und die resultierende Bewegung der Flußfäden zurückzuführen. Aufgrund von geometrischen Betrachtungen [Zel94b] ergeben sich für die benutzte Washer-Geometrie Eindringfelder von [Sel98]

$$B_p = B_{c1} \sqrt{t/w} \approx 20\mu\text{T}. \quad (4.8)$$

Hierbei ist das untere kritische Feld mit $B_{c1}(77\text{K}) \approx 6\text{mT}$ abgeschätzt worden, $t \approx 200\text{nm}$ die Schichtdicke und w die Washerdiagonale, mit dem Washer als die für die Feldverdrängung

verantwortliche Fläche. Dies steht in sehr guter Übereinstimmung zu den gemessenen Werten von ca. $10\mu\text{T}$ (s. Abb. 4.40). Ein ähnliches Verhalten wird auch für unstrukturierte YBCO-Schichten [Fer94] und YBCO-dc-SQUIDS [Mik94] berichtet.

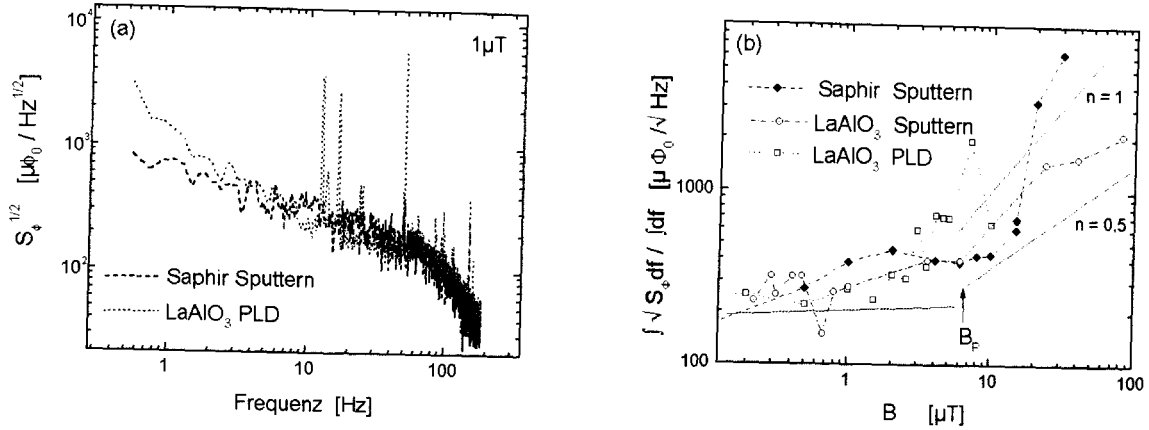


Abb. 4.40: Vergleich des Rauschens für einen gesputterte SQUID auf Saphir, einen gesputterte SQUID auf LaAlO₃ und einen ablatierter SQUID auf LaAlO₃. (a) Vergleich der Rauschspektren bei einem angelegten Feld von $1\mu\text{T}$. (b) Zur Mittelung wurde das Rauschen über die Frequenz von 0,5-10Hz integriert.

Oberhalb B_p wird nun das niederfrequente Rauschen durch die Beweglichkeit der nun in den Washer eindringenden Vortices bestimmt. Daher gilt für $B > B_p$

$$S \propto B. \quad (4.9)$$

Somit wird eine Steigung $n = 1/2$ entsprechend

$$\int \sqrt{S} df \propto B^{1/2} \quad (4.10)$$

für die Feldabhängigkeit des Flußrauschens erwartet. Die Abweichung der gemessenen Feldabhängigkeit von der erwarteten Abhängigkeit liegt durchaus in dem in der Literatur gefundenen Bereich [Mik94, Sel97].

Als Fazit läßt sich festhalten, daß trotz des in Kap. 4.1.1 beschriebenen unterschiedlichen Wachstums an der Stufe gesputterte Magnetometer auf LaAlO₃ in ihrem SQUID-Verhalten kaum von mittels PLD hergestellten Proben auf LaAlO₃ zu unterscheiden sind. Korngrenzenkontakte auf Saphir eignen sich ebenfalls für den Einsatz in rf-SQUIDS. Zwar haben sie einen kleineren Hub und einen größeren Feld-zu-Fluß-Koeffizienten als vergleichbare Magnetometer auf LaAlO₃, sie besitzen aber durchaus vergleichbare Rauscheigenschaften. Auch Saphir-SQUIDS

mit FFI-Kontakten können prinzipiell funktionieren. Leider konnten sie in der vorliegenden Form mit derartig großen I_c -Werten und der verwandten Standardelektronik nicht in einer Flußregelschleife betrieben werden, so daß ihre Eigenschaften hier nicht abschließend bewertet werden können..

Gradiometer auf 2“-LaAlO₃ und Saphir

Der Vergleich typischer Werte der charakteristischen Parameter von Gradiometern auf LaAlO₃ und Saphir (Tab. 4.4) zeigt, daß Gradiometer ebenso wie Magnetometer unabhängig vom Depositionsverfahren unter Berücksichtigung der Basislänge ähnliche Eigenschaften besaßen. Die gute Homogenität der Schichten und zusätzlich die optimierten Strukturierungsprozesse resultierten in einer relativ geringen Streuung. So funktionierten alle planaren Gradiometer auf einem 2“-Wafer, wobei die Streuung des Hubes ΔU_{rr} der SQUIDs über einen Wafer einen Wert von $\sigma \approx 12\%$ besaß.

Gradiometer	Basis- länge [mm]	Hub ΔU_{rr} [mV _{pp} /Φ ₀]	Periode $dU_s/d\Phi_0$ [V/Φ ₀]	$\sqrt{S_\Phi}$ @100Hz [μΦ ₀ /√Hz]	$dB/d\Phi$ [μT/Φ ₀]	$dB^2/d\Phi dx$ [nT/Φ ₀ ·cm]	Balance
LAO-PLD ^[Mau98]	2,6	70	2,5	35	19	53	300- 1000
	3,6	70	2,5	70-80	14	34	
	5	70	2,5	115	8	15	
LAO	5	70	2,5	145	5	16	660
LAO mit Abdeckung	5	70	17	80	-	35	10
ALO	5	60	3,5	50	-	-	-

Tab. 4.4: Eigenschaften der untersuchten Gradiometer. Alle Proben basieren, wenn nicht anders vermerkt, auf Stufenkontakten aus gesputterten Schichten. (ALO: Al₂O₃, LAO: LaAlO₃,).

Bei einigen planaren Gradiometern wurden die Schlitz zwischen den Zuleitungen zu den eigentlichen Schleifen mit einer supraleitenden Schicht abgedeckt, um zu untersuchen, ob und

inwieweit so die Induktivität und damit das Flußrauschen gesenkt werden können. Dazu wurde zunächst eine etwa 250nm dicke CeO_2 und darauf in-situ eine ca. 200nm dicke YBCO-Schicht abgeschieden. Dieser YBCO-Film wurde mit dem in Kap. 3.2.2 beschriebenen Standardverfahren zu zwei Stegen strukturiert, die die beiden Schlitze vollständig abdecken. Im Gegensatz zu planaren Gradiometern, die mittels PLD hergestellt wurden, traten bei den Gradiometern mit gesputterten Schichten keine Kurzschlüsse zwischen Gradiometer-YBCO-Schicht und Abdeck-YBCO-Schicht auf [Mau98]. Das Fehlen der störenden Kurzschlüsse ist wahrscheinlich durch die glatten und vor allem auscheidungsfreien gesputterten YBCO-Filmen begründet [Ock95]. Im Falle der kurzschlußfreien abgedeckten Gradiometer (5mm Basislänge) stieg der Gradient-zu-Fluß-Koeffizient um einen Faktor 2 auf $35\text{nT}/\Phi_0\text{-cm}$ (s. Tab. 4.4). Gleichzeitig nahm das Rauschen ungefähr um einen Faktor 2 auf $80\mu\Phi_0/\sqrt{\text{Hz}}$ ab (s. Abb. 4.41). Beides sind eindeutige Anzeichen für die Verkleinerung der Aufnehmerflächen um die Flächen der Schlitze, da diese etwa die Hälfte der gesamten Schleifenflächen ausmachen. Damit ist bestätigt, daß das Prinzip einer supraleitenden Abdeckung funktioniert. Es läßt sich also durch geeignete supraleitende Abdeckungen die Forderung nach langer Basislänge bei gleichzeitig geringem Rauschen erfüllen.

Aufschlußreich ist die Auftragung des weißen Rauschens gegen die Basislänge der planaren Gradiometer (Abb. 4.41). Für die Proben auf LAO ohne Abdeckung wächst das Rauschen mit zunehmender Länge der Zuleitungen. Dieses läßt sich durch die Zunahme der Induktivität mit der Fläche und dem Zusammenhang zwischen Induktivität und Rauschen

$$\sqrt{S_\Phi} = (k_B T L_s)^{1/2} \quad (4.11)$$

erklären. Bei abgedeckten Gradiometer mit einer Basislänge von 5mm ergibt sich aufgrund der kleineren Induktivität ein ungefähr um den Faktor 2 kleineres Rauschen im Vergleich zu den unabgedeckten Proben.

Gradiometer auf Saphir besaßen ähnlich wie die Magnetometer auf Saphir Unregelmäßigkeiten in der Fluß-Spannungs-Kennlinie (s. Abb. 4.38). Diese scheinen das Rauschen kaum zu beeinflussen, wie die Rauscheigenschaften, die in Abb. 4.42 wiedergegeben werden, zeigen. Beim Vergleich der Gradiometer auf Saphir und auf LaAlO_3 in Tab. 4.4 und Abb. 4.41 fällt auf, daß das Rauschen von SQUIDs auf Saphir teilweise deutlich besser als auf LaAlO_3 ist, obwohl der Hub tendenziell kleiner und das Dreieckssignal von Störungen überlagert wird. Eine Ursache ist die erhöhte Periode bei Saphir, d.h. eine verminderte Magnetfeldempfindlichkeit, die das Rauschen beeinflusst (s Gl. 4.7). Weitere Herstellungen und Untersuchungen von Gradiometern

auf Saphir sind sicherlich notwendig, um zu klären, ob sich hiermit ein Potential für Anwendungen anbietet. Die gesputterten Gradiometer auf LaAlO_3 zeichnen sich durch eine geringe Streuung aus, was die Leistungsfähigkeit der entwickelten großflächigen Herstellung von Stufenkontakten aufzeigt.

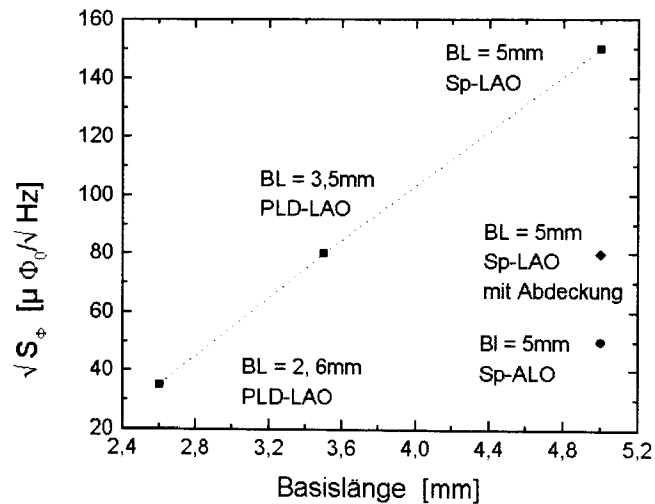


Abb. 4.41: Abhängigkeit des weißen Rauschens (gemessen bei 100Hz) von der Basislänge. Es werden unterschiedliche Depositionsmethoden (Sputtern (SP) und PLD), unterschiedliche Substratmaterialien (Al_2O_3 (ALO) und LaAlO_3 (LAO)) und der Einfluß einer supraleitenden Abdeckung verglichen.

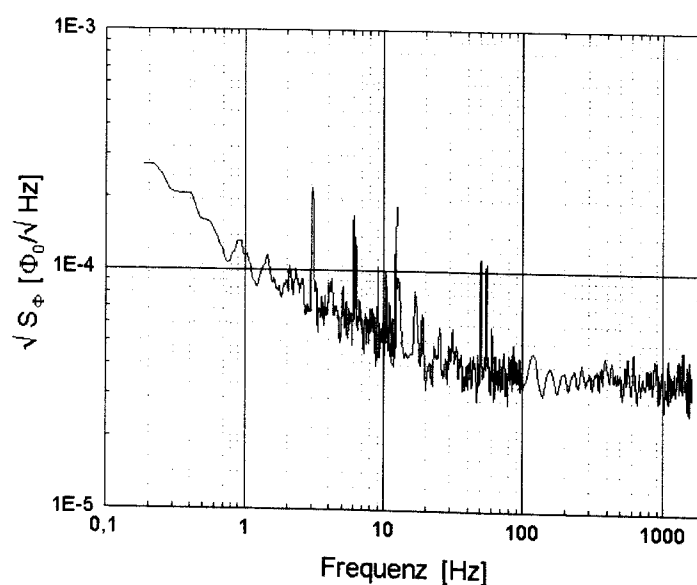


Abb. 4.42: Rauschspektrum eines rf-SQUID eines Gradiometers auf Saphir.

Zusammenfassung

In diesem Abschnitt wurde Saphir als Substratmaterial für Stufenkontakte in SQUID-Anwendungen untersucht. Es hat sich dabei herausgestellt, daß SQUIDs mit FFI-Kontakten zwar grundsätzlich funktionieren, aber die auftretenden I_c -Werte zu groß zu sein scheinen, als daß die SQUIDs störungsfrei in einer Flußregelschleife arbeiten. Im Gegensatz dazu stellen Korngrenzenkontakten auf Saphir als Substratmaterial durchaus eine Alternative zu Standardsubstraten, wie LaAlO_3 dar, da das Verhalten der SQUIDs vergleichbar ist. Jedoch bestätigen Unregelmäßigkeiten in der Transferfunktion, daß der Kontakt, d.h. das Wachstum des YBCO-Films an der Stufe, noch optimiert werden muß. Im Falle der Verwendung von $2''$ - LaAlO_3 -Wafern konnte demonstriert werden, daß SQUIDs auf diesem Standardmaterial großflächig mit einer kleinen Streuung reproduzierbar und mit großen Abmessungen herzustellen sind. Ferner wurden zum ersten Mal ‚abgedeckte Gradiometer‘ mit langer Basislänge präpariert und vermessen, und damit gezeigt, daß durch eine supraleitende Abdeckung lange Basislängen und geringe Rauschwerte kombiniert werden können.

5. Zusammenfassung

Im Rahmen dieser Arbeit wurde eine Technologie zur Herstellung von YBCO-Stufenkontakten auf hochfrequenztauglichen und großflächigen Substraten entwickelt. Es wurde das Wachstum von mittels Kathodenzerstäubung abgeschiedenen YBCO-Filmen an Stufen in den unterschiedlichen Materialien (LaAlO_3 , Saphir und CeO_2) untersucht und das Verhalten der resultierenden unterschiedlichen Kontakte charakterisiert und klassifiziert. Schließlich wurde die Verwendbarkeit des entwickelten Verfahrens durch die Anwendung der Kontakte in rf-SQUIDs und planaren Gradiometern demonstriert.

Bei der Auswahl der Substratmaterialien stand neben der Waferskalierung auch der Aspekt der Hochfrequenztauglichkeit im Vordergrund. Saphir und LaAlO_3 wurden als geeignete Substratmaterialien ausgewählt, wobei Saphir durch seine gute Maßhaltigkeit, die hf-Eigenschaften und die Eignung für supraleitende/halbleitende Hybridsysteme und LaAlO_3 im Hinblick auf die einfache Stufen- und Schichtpräparation Vorteile bieten.

Basierend auf der Hochdruck-Magnetron-Kathodenzerstäubung wurden Prozesse zur reproduzierbaren und homogenen Abscheidung von großflächigen Einzel- und Mehrlagenschichten entwickelt. Die Einführung von 6“-Ringtargets und eines Heizsystems mit effizienterem Wärmeübertrag gewährleisteten eine homogene Filmabscheidung auf 2“-Wafers. Die ausscheidungsfreien, supraleitenden Schichten hatten Übergangstemperaturen von $T_c = 86\text{-}89^\circ\text{K}$. Die Halbwertsbreite der Rockingkurven des (005)-Reflexes von YBCO war stark von der Gitterfehlpassung zwischen Substrat und Film abhängig. Sie reichte von $\Delta\omega = 0,2^\circ$ auf LaAlO_3 bis zu $\Delta\omega = 0,7^\circ$ auf Saphir. Mit Hilfe eines optimierten Abkühlprozesses bei Sputterdruck konnten auf Saphirsubstraten CeO_2/YBCO -Schichtpakete von bis zu 500nm rißfrei hergestellt werden. Größere Dicken des Schichtsystems wurden nicht getestet.

Für die Präparation von Stufenkontakten auf LaAlO_3 wurden Standardwerte aus der Literatur übernommen, d.h. Stufenwinkel $\alpha = 60^\circ\text{-}70^\circ$ und Verhältnis Filmdicke zu Stufenhöhe $2/3$. Auf Saphir mußten neue Verfahrensweisen entwickelt werden. So wurden Stufen sowohl in unterschiedlichen Puffern als auch im Saphir selbst mit unterschiedlichen Stufenwinkeln getestet. Hierbei erwiesen sich Stufen in ca. 300nm dicken CeO_2 -Puffern

mit Stufenwinkeln von $\alpha \approx 60^\circ$ für die Erzeugung von Korngrenzenkontakten am günstigsten. Für die gleichmäßige und kontrollierte Präparation von Stufen und YBCO auf 2“-Substraten wurden entsprechende Strukturierungsprozesse entwickelt und optimiert.

Die detaillierte Untersuchung der Mikrostruktur mittels TEM legte gravierende Unterschiede des Filmwachstums an Stufen im Falle unterschiedlicher Depositionsverfahren (Sputtern und PLD) offen. Zwar entstehen bei einem geeigneten Stufenwinkel sowohl bei der in dieser Arbeit eingesetzten YBCO-Sputterdeposition als auch bei YBCO-Laserablation Korngrenzen im YBCO. Jedoch bilden sich im Falle der Kathodenzerstäubung zusätzliche Phasen und kleine YBCO-Bereiche unterschiedlicher Orientierung an der Stufe. Dieser Unterschied kann auf die Tatsache zurückgeführt werden, daß Sputtern einen kontinuierlichen Beschichtungsprozeß und die PLD-Abscheidung einen gepulsten Prozeß darstellen, bei denen unterschiedliches Wachstumsverhalten auch im Falle der Schichtabscheidung bekannt sind.

Das Wachstum des YBCO-Films auf Saphirstufen und CeO_2 -Stufen auf Saphir wurde anhand von TEM-Aufnahmen und mit Hilfe zweier Modelle diskutiert. Im Netzebenenmodell werden die Epitaxiebedingungen für das Aufwachsen eines YBCO-Filmes an der Stufe durch die Netzebene, die von den auf der Stufenflankenoberfläche angeordneten Atomen aufgespannt wird, festgelegt, wohingegen beim Treppenstufenmodell die mikroskopische Morphologie der Stufe berücksichtigt wird. So wachsen die CeO_2 - und YBCO-Filme auf Stufen in Saphir aufgrund der hexagonalen Kristallstruktur des Saphirs nur polykristallin auf. Auf Stufen in CeO_2 bilden sich bei Stufenwinkeln kleiner als 45° bzw. größer als 75° keine Korngrenzen an der Stufe. Der Film wächst über das ganze Substrat c-Achsen-orientiert auf. Dagegen wächst bei einem Stufenwinkel von 55° - 60° der YBCO-Film mit der c-Achse normal zur Stufenflanke auf, so daß entsprechende Kippkorngrenzen im oberen und unteren Stufenbereich entstehen. Dabei können allerdings drei unterschiedliche in-plane Orientierungen an der Stufe auftreten.

Die Stufenkontakte auf Saphir wurden zum einen elektronisch vermessen, zum anderen in SQUID-Magnetometern und planaren Gradiometern auf der Basis von rf-SQUIDs eingesetzt und getestet. Die Messungen ergaben, daß in korngrenzenfreien Kontakten aufgrund von überkritischen Vortexgeschwindigkeiten Flux-Flow-Instabilitäten auftreten, die ein nichtlineares Strom-Spannungs- und damit Strom-Widerstandsverhalten

verursachen. Es konnte gezeigt werden, daß diese Kontakte ähnlich wie Mikrobrücken für entsprechende Anwendungen im SQUID-Bereich äußerst stabil arbeiten. Allerdings sollten die Kontakte möglichst klein strukturiert werden, um die Leistungen, die für das Erzeugen von Flux-Flow-Instabilitäten nötig sind, möglichst gering zu halten. Kontakte mit Korngrenzen zeigten bei einem optimalen Verhältnis von Filmdicke zu Stufenhöhe von $t/h = 3/2$ RSJ-ähnliches Verhalten. Allerdings zeugte eine geringe Modulation der $I_c(B)$ -Kurven von inhomogenen Stromverteilungen und bestätigte das Auftreten von strukturellen Unregelmäßigkeiten an der Stufe. Dennoch eignen sich die Stufenkontakte auf Saphir durchaus für den Einsatz in rf-SQUIDs. Im Gegensatz zu der in der Literatur oft berichteten schnellen Alterung von Kontakten auf Saphir waren die Eigenschaften unserer Magnetometer und Gradiometer auf Saphir zumindest über mehrere Monate stabil (längere Zeit wurde nicht gemessen) und durchaus vergleichbar mit denen von Kontakten auf Standardsubstraten. Das weiße Flußrauschen war mit $\sqrt{S_\Phi} = 50\mu\Phi_0/\sqrt{\text{Hz}}$ geringer als bei planaren Gradiometern gleichen Designs auf LaAlO_3 .

Schließlich konnten mittels der entwickelten Sputtertechnologie erstmalig Mehrlagen-SQUID-Gradiometer (Basislänge 5mm) mit supraleitender Abdeckung der Schlitze präpariert und vermessen werden. Aufgrund der Abdeckung sank die Induktivität und damit das weiße Flußrauschen des Bauelements um den Faktor 2 auf $\sqrt{S_\Phi} = 80\mu\Phi_0/\sqrt{\text{Hz}}$. Gleichzeitig stieg infolge der verkleinerten Einkopplfläche der Feldgradient-zu-Fluß-Koeffizient um einen Faktor 2 auf $35\text{nT}/\Phi_0\text{cm}$. Damit wurde nicht nur der präparative Nachweis erbracht, daß diese Technologie ideal zur Herstellung komplexerer, großflächiger Mehrlagenanwendungen im Bereich der aktiven Bauelemente geeignet ist. Die elektrischen Messungen zeigten auch, daß supraleitende Abdeckungen zur Verringerung der Induktivität und Verbesserung der Bauelementeigenschaften beitragen können.

Es wurde somit demonstriert, daß auf 2^o-Substraten (LaAlO_3 und Saphir) homogen und reproduzierbar Bauelemente in Einzel- und Multilagensystemen mittels Hochdruck-Magnetron-Sputtertechnologie herzustellen sind. Gleichzeitig steht mit den Stufenkontakten auf dem Saphir/ CeO_2 -System ein hf-taugliches aktives Bauelement zur Verfügung, das sich auch für den Einsatz in supraleitenden/halbleitenden Hybridsystemen eignet.

Literaturverzeichnis

- [Ada95] R. Adam, IEEE Trans. Appl. Sup. Vol **5**, No. 2, 2774 (1995);
- [And62] P. W. Anderson, Phys. Rev. Lett. **9**, 309 (1962); P. W. Anderson, Y.B Kim, Rev. Mod. Phys. **36**, 39 (1964);
- [And64] P. W. Anderson, A. H. Dayem, Phys. Rev. Lett. **13**, 195 (1964);
- [Bab90] S. E. Babcock, Nature **347**, 167 (1990);
- [Bar65] J. Bardeen, M.J. Stephen, Phys. Rev. B **140**, A1197 (1965);
- [Bar82] A. Barone, G. Paterno, in „Physics and Applications of the Josephson Effect“, Wiley, (1982);
- [Bat] Batlogg, Physica C;
- [Bec94] T. Becker, Dissertation Uni Giessen (1994);
- [Bed86] J.G. Bednorz, K.A. Müller, Z. Physik **B 64**,189 (1986);
- [Bel91] G.L. Belenky, Phys. Rev. B **44**, 10117 (1991);
- [Ber92] Bergmann, Schäfer, „Lehrbuch der Experimentalphysik“, Walter de Gruyter, Berlin (1992);
- [Beu95] S. Beuven, M. Darula, J. Schubert, W. Zander, M. Siegel, P. Seidel, IEEE Trans. Appl. Supercond. **5**, 3289 (1995);
- [Bra93] E. H. Brandt, Phys. Rev. Lett. **71**, 2821 (1993), E. H. Brandt, M. Indenbom: Phys. Rev. B **48** (17) 12893 (1993);
- [Buc90] W. Buckel, Supraleitung, VCH (1990);
- [Cav90a] R. J. Cava, Sciences **247**, 656 (1990);
- [Cav90b] R. J.Cava, A. W. Hewat, E. A. Hewat, B. Batlogg, M Marezio, K. M. Rabe, J. J. Krajewski, J. W. F. Peck, J. L. W. Rupp, Physica C **165**, 419 (1990);
- [Cha91] P. Chaudari, Physica C **185-189**, 292 (1992);
- [Che95] N.G. Chew, J. A. Edwards, R. G. Humphreys, J. S. Satchell, S.W. Goodyear, B. Dew, N. J. Exon, IEEE Trans. Appl. Supercond., **5**, 1167 (1995);
- [Cot75] A.H. Cottrell, in „Physics of Metals. 2. Defects“ ed. By P.B. Hirsch, Cambridge University Press (1975);
- [Dam96] B. Dam, N. J. Koeman, J. H. Rector, B. Stäuble-Pümpin, U. Poppe, R. Griessen,,: Physica C **261**, 1 (1996);
- [Del96] K.A. Delin, A.W. Kleinsasser, Supercond. Sci. Technol. **9**, 227 (1996);
- [Dim88] D. Dimos, P. Chaudari, J.Mannhart, F. K. LeGoues, Phys. Rev. Lett. **61**, 219 (1988);

- [Doe94] S.G. Doettinger, Phys. Rev. Lett. 73, 1691 (1994), S.G. Doettinger, Physica C 235-241, 3179 (1994);
- [Doe95] S.G. Doettinger, Physica C 251, 285 (1995);
- [Eid91] W. Eidelloth, R. L. Sandstrom, APL, **59**, 13 (1991);
- [Eom92] C.B. Eom, Phys. Rev. **46** 11902 (1992);
- [Fal93] M. I. Faley, U. Poppe, H. Soltner, U. Dähne, N. Klein, H. Schulz, W. Evers, K. Urban, IEEE Trans. Appl. Supercond., **5**, 1167 (1993);
- [Fee91] R. Feenstra, T. B. Lindemmer, J. D. Budai, M. D. Galloway, J. Appl. Phys. **69**, Vol. 9, 6569 (1991);
- [Fer94] M.J. Ferrari, M. Johnson, F.C. Wellstood, J.J. Kingston, T.J. Shaw, J. Clarke, J. Low Temp. Phys. **94**, 15 (1994);
- [Fit91] E.A. Fitzgerald, Mater Sci. Rep. **7**, 87 (1991), (und darin zitierte Quellen);
- [Ger91] C. Gerber, Nature 350, 279 (1991);
- [Gin] D.M. Ginsberg (Ed.), „Physical Properties of High Temperature Superconductors III“;
- [Gro90] R. Gross, P. Chaudari, D.Dimos, A. Gupta, G.Koren, Phys. Rev. Lett. **64**, 228 (1990);
- [Gro91a] R. Gross, B. Mayer, Physica C **180**, 235 (1991);
- [Gro91b] R. Gross, Supercond. Sci. Technol. **4**, 253 (1991);
- [Gro92] R. Gross, in „Interfaces in Superconducting Systems“, ed. S.L. Shinde, D. Rudman, (Springer Verlag, New York 1992);
- [Gro96] R. Gross, Proc. 3rd HTS-Workshop on Digital Applications, Josephson Junctions and 3-Terminal Devices, Enschede (NL), 22.-24- April 1996;
- [Gus97a] M. Gustafsson, E. Olsson, H.R. Yi, M. Vaupel, R. Wördenweber, IEEE Trans. Appl. Sup. Vol **7**, No. 1, 241,(1997) ;
- [Gus97b] M. Gustafsson, E. Olsson, H.R. Yi, D. Winkler, T. Claeson, Appl. Phys. Lett. **70**, 2903 (1997);
- [Gus97c] M. Gustafsson, E. Olsson, H.R. Yi, D. Winkler, T. Claeson, Journal of Alloys and Compounds **251**, 19 (1997);
- [Hal92] J. Halbritter, Phys. Rev. B, **46** (22) 14861 (1992);
- [Ham93] R.B. Hammond, IEEE Spektrum April 34 (1993);
- [Her91] K. Herrmann, Y. Zhang, H.-M. Mück, J. Schubert, W. Zander, A.I. Braginski: Supercond. Sci. Technol. **4**, 585 (1991);
- [Her93] K. Herrmann, Dissertation, Uni Giessen (1993);
- [Her95] K. Herrmann, G. Kunkel, M. Siegel, J. Schubert, W. Zander, A.I. Braginski, C. L. Yia, B. Kabius, K. Urban, J. Appl. Phys. **78** (2) 1131 (1995);
- [Hir82] J. P. Hirth, J. Lothe, in „Theory of Dislocations“, John Wiley & Sons, New York, (1982);

- [Hol94] E. Hollmann, O.G. Vendik, A.G. Zaitsev, B.T. Melekh, *Supercond. Sci. Technol.* **7**, 609 (1994);
- [Hum93] R.G. Humphreys, J.A. Edwards, *Physica C* **210**, 42 (1993);
- [Hun94] B.D. Hunt, M.C. Foote, W.T. Pike, J.B. Barner, R.P. Vasquez, *Physica C* **230**, 141 (1994);
- [Jor90] J. D. Jorgensen, B. W. Veal, A. P. Paulikas, L.J. Nowicki, G. W. Cragtree, H. Claus, W.K. Kwok, *Phys. Rev. B* **41**, 1863 (1990);
- [Jor91] J. D. Jorgensen, et al.: *Physica C* **185-189** 184 (1991);
- [Jos62] B.D. Josephson, *Phys. Lett.* **1**, 251 (1962);
- [Kap88] A. Kapitulnik, M. R. Beasley, C. Castellani, D. Castro, *Phys. Rev. B* **37**, 537 (1988);
- [Kit95] Kittel, Dissertation, Uni Karlsruhe (1995);
- [Kle85] W. Klein, *J. Low Temp. Phys.* **61**, 413 (1985);
- [Kot97] I. M. Kotelyanskii, A.D. Mashtakov., G.A. Ovsyannikov, *IEEE Trans. Appl. Sup.* Vol **7**, No. 1 475 (1997);
- [Krü94] U. Krüger, Dissertation, Uni. Gießen (1994);
- [Lah97] P. Lahl, Diplomarbeit RWTH Aachen (1997);
- [Lar73] A.I. Larkin, Y. N. Ovchinnikov, *Sov. Phys. JETP* **37**, 557 (1973);
- [Lar76] A.I. Larkin, Y. N. Ovchinnikov, *Sov. Phys. JETP* **41** No. 5, 960 (1976);
- [Leh98] Die Grafiken stellte Herr Dr. Lehmann zur Verfügung;
- [Lew94] D.J. Lew, Y. Suzuki, A.F. Marshall, T.H. Geballe, M.R. Beasley: *Appl. Phys. Lett.* **65** 1584 (1994);
- [Lik72] K. K. Likharev, *Sov. Phys. JETP* **34**, 906 (1972);
- [Lik86] K. K. Likharev, *Dynamics of Josephson Junctions and Circuits*, Gordon and Breach, New York 1986;
- [Luo91] I. Luo, X.D. Wu, R.C. Dye, R.E. Muenchausen, S.R. Foltyn, Y. Couter, C. J. Maggiore, T. Inoue, *Appl. Phys. Lett.* **59**, 2043 (1991);
- [Mar92] A.F. Marshall, R. Ramesh, in „Interfaces in Superconducting Systems“, ed. S.L. Shinde, D. Rudman, (Springer Verlag, New York 1992);
- [Mar95a] A. Marx, *Appl. Phys. Lett.* **67**, 1929 (1995);
- [Mar95b] A. Marx, *Phys. Rev. B* **51**, 6735 (1995);
- [Mar97] A. Marx et al., *Appl. Phys. Lett.* **70**, 120 (1997);
- [Mau98] M. Maus, M. Vaupel, noch nicht veröffentlicht;
- [McC68] D.E. McCumber, *Appl. Phys. Lett.* **12**, 3113 (1968);
- [Mei33] W. Meissner, R. Ochsenfeld, *Naturwissenschaften* **21**, 787 (1933);
- [Mik92] A.H. Miklich et al., *Appl. Phys. Lett.* **60**, 1899 (1992);
- [Moe93] B. H. Moekley, D.K. Lathrop, R. A. Buhrman: *Phys. Rev. B* **47**, 400 (1993);

- [Moe94] B. H. Moekley, R. A. Buhrman: Appl. Phys. Lett. **65** 3126 (1994);
- [Nor92] M.G. Norton, C.B. Carter, in „Interfaces in Superconducting Systems“ ,ed. S.L. Shinde, D. Rudman, (Springer Verlag, New York 1992);
- [O'Br90] O'Bryan, J. Mater. Res. **5**, 183 (1990);
- [Ock95a] G. Ockenfuß, Dissertation, Uni. Gießen (1995);
- [Ock95b] G. Ockenfuß, R. Wördenweber, T. A. Scherer, R. Unger und W. Jutzi, Physica C **243**, 24 (1995);
- [Ock95c] G. Ockenfuß, Patentanmeldung Pt 0.1370;
- [Ovs95] G.A. Ovsyannikov, A.D. Mashtakov, I.M. Kotelyanski, P.B. Mozhaev, K.Y. Constantinian, Z.G. Ivanov, D. Erst, IEEE Trans. Appl. Sup. Vol **5**, No. 2, (1995);
- [Ovs98] G.A. Ovsyannikov, private Mitteilung;
- [Ovs99] G.A. Ovsyannikov, eingereicht bei IEEE Trans. Appl. Sup. (1999);
- [Pen92] S.J. Pennycook, Physica C **202**, 1 (1992);
- [Pet95] C.L. Pettiette-Hall, J.A. Luine, J. Murduck, J.F. Burch, R. Hu, M. Sergeant, D. St. John, IEEE Trans. Appl. Sup. Vol **5**, No. 2, (1995);
- [Pie87] W. Pies, A. Weiss: Landolt-Börnstein: Zahlenwerte und Funktionen aus Naturw. und Technik, III, 7 (1987);
- [Rob64] B.W. Roberts, „Superconducting Materials and Some of their Properties“, IV, Progress in Cryogenics, **160** (1964);
- [Ros91] P. Rosenthal, M. R. Beasley, K. Char, M. S. Colclough and G. Zaharchuk, Appl. Phys. Lett. **59**, 3482 (1991);
- [Ros92] S. J. Rosner, K. Char, G. Zaharchuk, Appl. Phys. Lett. **60**, 1010, (1992);
- [Sai63] P. Saint-James and P.G. de Gennes, Phys. Lett. **7**, 306 (1963);
- [Rus90] S.E. Russek, Appl. Phys. Lett. **57**, 1155 (1990);
- [Sch95] J. Schneider, Dissertation, Uni Giessen (1995);
- [Sel97] P.A. Selders, Diplomarbeit, RWTH Aachen (1997);
- [Sel98] P.A. Selders, A. Castellanos, M. Vaupel, R. Wördenweber, Applied Superconductivity Vol. **5**, Nos 7-12, 269 (1998);
- [Sha94] J. F. Shackelford (ed.): „Materials Science and Engineering Handbook“, CRC Press (1994);
- [Sim90] R. W. Simon, in R. D. McConnell and Noufi (eds), „Science and Technology of Thin Film Superconductors 2“, Plenum Press, New York, p. 549 (1990);
- [Sim91] R. W. Simon, J. B. Bulman, J. B. Burch, S. B. Burch, S. B. Coons, K. P. Daly, W. D. Dozier, R. Hu, A. E. Lee, J. A. Luine, C. E. Paltt, S. M. Schwarzbek, M. S. Wire, M. J. Zani, IEEE Trans. Mag. Vol **27**, No. 2, 3209 (1991);
- [Ste68] W.C. Steward, Appl. Phys. Lett. **12**, 277 (1968);
- [Sto75] M.J. Stowell, in „Epitaxial Groth“, ed. by J.W. Matthews, Academic Press (1975);

- [Str90] S.K. Streiffer, B.M. Lairson, J.C. Bravman, Appl. Phys. Lett. **57**, 2510 (1990);
- [Tin75] M. Tinkham, „Introduction to Superconductivity“, McGraw-Hill Book Company, New York, 1975;
- [Tou70] Y.S. Touloukian et al., in „Thermophysical Properties of Matter, Specific Heat, Nonmetallic Solids“, TPRC Data Series Vol **5**, IFI/Plenum, New York (1979);
- [Vau95] M. Vaupel, Diplomarbeit an der RWTH Aachen (1995);
- [Vau96a] M. Vaupel, G. Ockenfuss, R. Wördenweber, Appl. Phys. Lett. **68**, 3623 (1996);
- [Vau96b] M. Vaupel, G. Ockenfuß, R. Wördenweber, J. de Physique 4, Colloque 3, **6** (1996) C3-383;
- [Vau96c] M. Vaupel, G. Ockenfuß, R. Wördenweber, Proc. 3rd HTS-Workshop on Digital Applications, Josephson Junctions and δ -Terminal Devices, Enschede (NL), (1996) 138;
- [Vau97] M. Vaupel, G. Ockenfuß, R. Wördenweber, IEEE Trans. On Appl. Supercond, **7** 3454 (1997);
- [Wan93a] F. Wang, G. Kunkel, C. Coppetti, H. Kohlstedt, R. Wördenweber, Proc. Eucas'93 (Göttingen), 1155 (1993);
- [Win94] D. Winkler, Phys. Rev. Lett. **72**, 1260 (1994);
- [Wör91] R. Wördenweber, Supraleitende Schichten, Dünnschichttechnologie, VDI-Verlag (1991);
- [Wör96] Alle Meßprogramme sind von R. Wördenweber geschrieben worden;
- [Wor87] T. K. Worthington, W. J. Gallagher, and T. R. Dinger, Phys. Rev. Lett., **59** 1160, (1987);
- [Wos99] J. Wosik, eingereicht bei IEEE Trans. Appl. Sup. (1999);
- [Wu87] M. K. Wu, J.R. Asburn, C. J. Torng, P. H. Hor, R. L. Meng, L. Gao, Z. J. Huang, C. W. Chu, Phys. Rev. Lett. **58**, 908 (1987);
- [Wu92] X.D. Wu, Journal of Superconductivity, vol. **5**, No. 4, 353 (1992);
- [Yan70] I. K. Yanson, Sov.Phys. JETP, Vol **31**, 800-807 (1970);
- [Yi96] H.R. Yi, M. Gustafsson, D. Winkler, E. Olsson, T. Claeson, J. Appl. Phys., **79** 9213, (1996);
- [Yi96a] H. Yi, Appl. Phys. Lett. **68**, 2562 (1996);
- [Zha97] Y.Zhang, IEEE Trans. On Appl. Supercond. **7**, No 2, 2866-2869 (1997);
- [Zai97a] A.G. Zaitsev, Appl. Sup. **3** Inst. Phys. Conf. Ser. 158, 25 (1997);
- [Zai97b] A.G. Zaitsev, J. Appl. Phys. **81**, 3069 (1997);
- [Zai97c] A.G. Zaitsev, G. Ockenfuß, R. Wördenweber, IEEE Trans. Appl. Sup. Vol **7**, No. 1, 25,(1997);
- [Zai99] A.G. Zaitsev, G. Ockenfuß, R. Wördenweber, eingereicht bei IEEE Trans. Appl. Sup. (1999);

Danksagung

Die vorliegende Arbeit wurde am Institut für Schicht- und Ionentechnik des Forschungszentrums Jülich GmbH in Zusammenarbeit mit dem 2. Physikalischen Institut der Universität zu Köln angefertigt.

Mein Dank gilt Herrn Prof. Dr. R. Gross für die kurzfristige Übernahme des Referats und seinem unermüdlichen Einsatz für die termingerechte Beendigung der Promotion.

Herrn Prof. Dr. A. Freimuth danke ich für die spontane Übernahme des Koreferats.

Herrn Prof. Dr. A. I. Braginski danke ich für die Möglichkeit, diese Arbeit in der Abteilung Schichtsysteme und Bauelemente der Supraleitung anfertigen zu können.

Insbesondere möchte ich mich bei Herrn Dr. R. Wördenweber für die motivierende Betreuung und die wertvollen Anregungen bedanken.

Bei Herrn Dr. G. Ockenfuß bedanke ich mich für hilfreiche Diskussionen und die Einführung in die Tiefen der „NORDIKO“.

Herrn P. Selders schulde ich Dank für die SQUID-Messungen und die metaphysischen Erörterungen.

Weiterhin danke ich:

Herrn M. Maus für die Messungen an den planaren Gradiometern,

Frau Meertens, Frau M. Gustafsson und Herrn B. Kabius für die TEM-Aufnahmen,

den Herren Dr. J. Schneider und R. Kutzner für die Zurverfügungstellung von YBCO-Referenz-Schichten,

Herrn T. Königs, Herrn B. Hermanns, Frau S. Bunte und Frau Z. Chiratau für die Unterstützung in technischen Fragen,

bei den Kolleginnen und Kollegen den Herren P. Lahl, A. Zaitsev, R. Ott, J. Einfeld und Frau A. Castellanos für Ihre Unterstützung und das angenehme Arbeitsklima,

dem Team um Herrn F. J. Schröteler für ihre Unterstützung im Reinraum,

Frau M. Nonn für die Erstellung der Masken,

Herrn H. M. Schwan und Herrn R. Otto stellvertretend für die Mitarbeiter der Werkstätten für die Herstellung mechanischer bzw. elektrischer Teile,

den Herren H. P. Boehm und Dr. M. Grimm für die REM-Aufnahmen,

Herrn Dr. D. Guggi für Röntgenuntersuchungen,

Frau. N. Fuchs und Frau. I. Schumacher für die organisatorische Unterstützung,

Frau K. Barthels für fotografische Arbeiten,

den anderen Mitarbeitern im Institut für die Unterstützung und das angenehme Arbeitsklima und allen, die ich vergessen habe, für ihre Nachsicht.

Forschungszentrum Jülich



Jül-3636
Februar 1999
ISSN 0944-2952